

N° d'ordre :.....

THESE

présentée

pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

École doctorale : Institut National Polytechnique de Toulouse

Spécialité : Dynamique des fluides

Par Mme. DORRA Hammami Gassara

**Simulation de la formation d'un dépôt de
particules en microfiltration : effets
des conditions hydrodynamiques et des
interactions physicochimiques sur la
morphologie et la perméabilité apparente
du dépôt**

Soutenue le 17/12/2007 devant le jury composé de :

M.	Foued Elhalouani	Président
M.	Philippe Schmitz	Directeur de thèse
M.	Abdel-moneim Ayadi	Directeur de thèse
M.	Mounir Baccar	Rapporteur
Mme	Rachida Bouhlila	Rapporteur
Mme	Christine Laforgue	Rapporteur
M.	Marc Prat	Membre

À mes parents.

À mes sœurs et mes frères.

À toute ma famille.

À mes beaux-parents.

À mon beau frère et sa famille

À mon mari.

À ma très chère petite Mayssa

À la mémoire de mes grands parents.

Remerciements

Les travaux qui font l'objet de ce mémoire se sont déroulés au Laboratoire de Radio-Analyses et Environnement de l'ENIS, en collaboration avec le Groupe d'Etude sur les Milieux Poreux de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse et avec l'équipe « Biofilm, bioréacteur, bioséparations » du Laboratoire de Biotechnologie et Bioprocédés de Toulouse.

Au terme d'un travail infiniment enrichissant, je tiens à remercier Monsieur Abdel-moneim AYADI, Professeur à l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax, directeur de cette thèse, à l'initiative de ce projet innovant et ambitieux, pour m'avoir proposée d'en prendre la charge, m'avoir laissée une autonomie complète, m'avoir fait confiance et m'avoir aidée.

J'adresse mes plus vifs remerciements à Monsieur Philippe SCHMITZ, Professeur à l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, directeur de cette thèse, pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail ainsi que pour ses commentaires constructifs qui m'ont aidée à améliorer la qualité de ce travail.

J'adresse ma profonde reconnaissance à Monsieur Marc PRAT, responsable du Groupe d'Etude sur les Milieux Poreux, pour son soutien précieux, pour son étroite collaboration et pour tous les enrichissements qu'il a apportés à mon travail.

Mes remerciements vont également à Monsieur Mounir BACCAR, Madame Rachida Bouhlila et Madame Christine Lafforgue, rapporteurs de cette thèse, pour avoir accepté de consacrer une partie de leur temps à l'analyse de mon travail.

J'adresse mes remerciements également à Monsieur Foued Elhalouani, responsable de l'unité Physique et Mécanique des Matériaux de l'ENIS pour son soutien moral.

Je remercie l'ensemble du personnel du Groupe d'Etude sur les Milieux Poreux, avec une pensée particulière pour Franck NOEL, pour son aide et son amitié.

Je tiens à remercier l'ensemble des doctorants du laboratoire de Radio-Analyses et Environnements qui font régner dans le laboratoire une ambiance à la fois studieuse et conviviale.

J'adresse mes amitiés à mes compagnons du Laboratoire des Systèmes Electromécaniques de l'ENIS : Moez, Ismail, Kaïs et Montasar.

Je souhaite aussi remercier toute ma famille pour m'avoir constamment soutenue tout au long de ces années. Merci encore à ma sœur jumelle Sondes pour son encouragement et pour son aide.

Enfin, je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance en particulier à mon mari Faiez que je ne pourrais jamais assez remercier pour m'avoir encouragée dans les moments de désespoir, et pour avoir supporter de longues périodes de solitude pendant la période de ma thèse.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION.....	3
Chapitre 1. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE : Position du problème	10
1.1 Introduction	11
1.2 Présentation du système étudié	11
Forces Physico-chimiques	12
Force hydrodynamique	16
Force de Gravité et d’Inertie	16
Forces dues aux mouvements browniens	17
1.3 Revue de la littérature	18
1.4 Positionnement du problème	22
1.5 Conclusion	23
Bibliographie	25
Chapitre 2. MODELISATION NUMERIQUE DE LA FORMATION DU DEPOT : SANS SEPARATION D’ECHELLE	28
2.1 Introduction	29
2.2 Ecoulement à proximité d’un pore	30
2.3 Modélisation de la paroi filtrante	34
2.4 Trajectoire de la particule	37
2.4.1 Modèle	40
2.4.2 Equations à résoudre	43
2.4.3 Méthode numérique	45
2.5 Algorithme de formation de la couche de particules	46
2.6 Conclusion	50
Bibliographie	52

Chapitre 3. DENSITE DE PROBABILITE DE CAPTURE DE LA PREMIERE PARTICULE DEPOSEE	55
3.1 Introduction	56
3.2 Modèle de la paroi filtrante	60
3.3 Densité de probabilité de capture de la première particule sur la paroi à partir de positions initiales aléatoirement choisies	60
3.3.1 Taille de pore fixée	61
3.3.2 Taille de pore variable	69
3.4 Densité de probabilité de capture de la première particule sur la paroi à partir de positions initiales uniformément réparties	72
3.5 Conclusion	77
Bibliographie	78
 Chapitre 4. SIMULATION DYNAMIQUE DE LA FORMATION DU DEPOT DE PARTICULES SUR UNE SURFACE POREUSE	 79
4.1 Introduction	80
4.2 Revue de littérature	80
4.2.1 Influence des caractéristiques physiques	81
4.2.2 Influence des caractéristiques physico-chimiques	85
4.2.3 Formation du dépôt	86
4.3 Simulation dynamique de la formation du dépôt	87
4.4 Conclusion	108
Bibliographie	110
 Chapitre 5. SENSIBILITE DU PROBLEME.....	 112
5.1 Introduction	113
5.2 Sensibilité du domaine à pression imposée	113
5.2.1 Effets des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques.....	114
5.2.2 Effet de la taille de la particule.....	123
5.3 Angles de capture des particules au cours d'une filtration.....	125
5.3.1 Angles de capture au cours d'une filtration à pression imposée	126
5.3.2 Angles de capture au cours d'une filtration à débit imposé	130
5.4 Conclusion	135
Bibliographie	136
 CONCLUSION GENERALE.....	 137

INTRODUCTION GENERALE

La filtration intervient dans de nombreuses applications industrielles. Que ce soit dans le domaine automobile, aéronautique, dans le traitement des eaux ou l'agroalimentaire, l'emploi de filtres est primordial pour obtenir des fluides propres. Parmi l'ensemble des procédés de filtration existants, les procédés membranaires sont majoritaires. Ils sont basés sur l'utilisation d'une barrière mince sélective, la membrane, qui constitue une interface séparant deux milieux, à savoir le rétentat du perméat. Sous l'effet d'une force de transfert, elle permet le passage ou l'arrêt de certains composants entre les deux milieux qu'elle sépare. Dans le cas de la microfiltration, de l'ultrafiltration, de la nanofiltration et de l'osmose inverse, la force de transfert est un gradient de pression appliqué de part et d'autre de la membrane.

La figure 0.1 montre les techniques membranaires de filtration les plus utilisées, leurs seuils de séparation et aussi leurs domaines d'application.

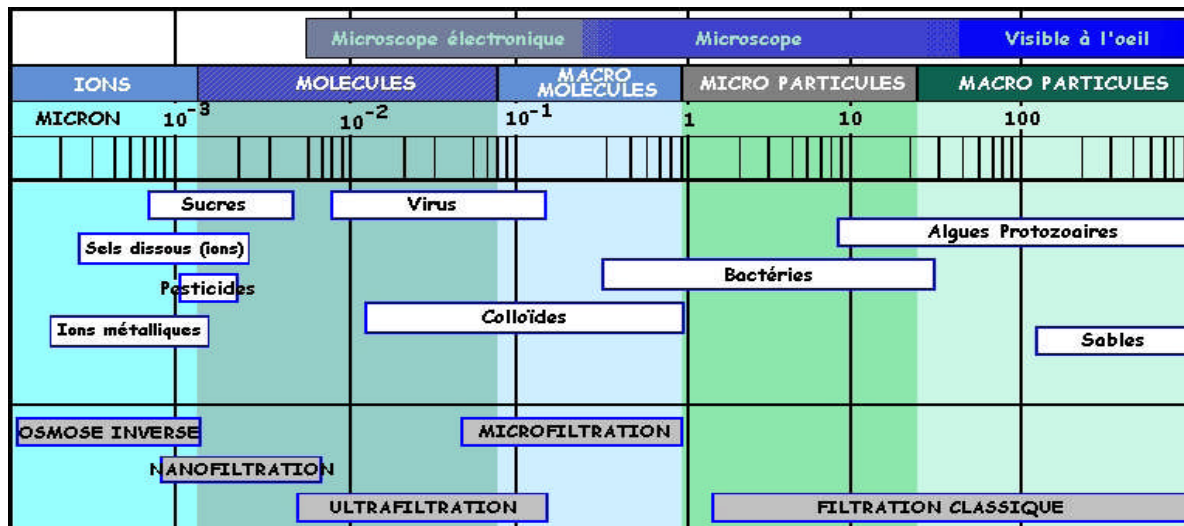


Figure 0.1. Classification des particules et les différents types de filtration

Dans tous les cas lors d'une telle épuration, les particules parasites que l'on souhaite éliminer se déposent sur le filtre. Le dépôt qui en résulte modifie les caractéristiques du filtre. Ce colmatage est de toute évidence nuisible au bon déroulement du processus de filtration. L'accumulation de particules tend à rendre le passage du fluide au travers de l'ensemble filtre-dépôt de plus en plus difficile et on assiste à une chute de perméabilité de l'ensemble.

Le but de la filtration étant de fixer les particules indésirables sur un collecteur, la chute de perméabilité est inévitable. La question de la filtration est de trouver un compromis convenable entre le nombre de particules que l'on souhaite capturer et la chute de perméabilité qui en résulte.

Il est alors intéressant de comprendre comment vont s'agréger les particules, afin de minimiser les pertes de charge au travers du bloc filtrant, et par la même occasion, d'augmenter la durée de vie du filtre. De ce fait, il est nécessaire de comprendre le phénomène du colmatage des membranes qui est le problème aigu parmi ceux rencontrés en filtration membranaire. Ce sujet a fait l'objet de nombreux travaux de recherche portant sur la modélisation du colmatage (Noël, 2006 ; Seminario et al., 2002 ; Jaffrin et al., 1997; Wiesner et Chellam, 1992) ou sur les mécanismes de colmatage (Tarabara et al., 2004 ; Pinheiro et al., 1999 ; Belfort et al., 1994).

Le colmatage découle de l'accumulation de matière à la surface des membranes ou en profondeur (figure 0.2).

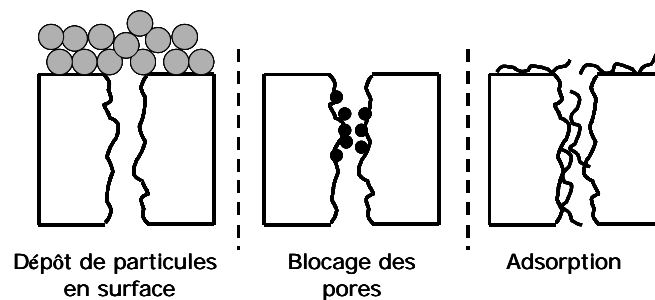


Figure 0.2. Différentes formes de colmatage

Quand un système membranaire est opéré à pression transmembranaire constante, la conséquence la plus problématique du colmatage est une diminution, parfois extrêmement accentuée, du flux de perméat dans le temps. Lors d'une filtration à débit constant, la conséquence du colmatage est une augmentation de la perte de charge. Quelque soit les conditions de fonctionnement du dispositif de filtration par membrane, l'accumulation des particules sur la paroi filtrante affecte le pouvoir de séparation d'une membrane en agissant, par exemple, comme une deuxième membrane qui se superpose à la première, ce qui conduit à une augmentation de la résistance hydraulique de l'ensemble du système (dépôt de particules + membrane).

De nombreux travaux expérimentaux et théoriques (Zeman et al., 1996) ont ainsi été consacrés à l'étude du dépôt et de ses propriétés de transport afin de prédire le fonctionnement du système filtrant et de l'optimiser. Un certain nombre de lois empiriques ont été proposées. Ces lois s'appuient généralement sur l'hypothèse d'additivité des résistances hydrauliques, respectivement du filtre et du dépôt de particules. De plus, la résistance hydraulique du dépôt

est prise égale à sa résistance hydraulique intrinsèque, c'est à dire sans tenir compte de la présence de la paroi filtrante. Enfin, le dépôt est supposé homogène de telle sorte que les lois de perméabilité usuelles puissent être utilisées (par exemple Karman Cozeny).

Toutes ces hypothèses simplificatrices sont largement admises lorsque le dépôt de particules est pleinement développé (plusieurs dizaines de couches de particules) mais restent sujettes à discussion au cours des premières étapes de formation du dépôt (premières couches de particules) (Figure 0.3). En effet, d'un point de vue hydrodynamique, le problème de l'évolution de la perméabilité apparente du système « dépôt / paroi poreuse filtrante » reste largement ouvert, d'une part compte tenu de la rupture de périodicité spatiale de l'écoulement au sein du dépôt au voisinage de la paroi, et d'autre part en l'absence de séparation des échelles, c'est à dire lorsque les tailles de la particule et du pore sont du même ordre de grandeur. En effet, pour ces deux raisons, la classique loi de Darcy ne peut rigoureusement pas s'appliquer pour décrire l'écoulement à travers le milieu poreux que constitue le dépôt (Dufrêche et al., 2002). De plus, la perméabilité « locale », c'est à dire à l'échelle d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER) de ce milieu poreux, dépend de la microstructure, résultant de l'agencement des particules, qui peut varier spatialement en fonction des interactions physico-chimiques et hydrodynamiques entre particules et entre particule et paroi. Ainsi l'objectif de cette thèse est d'étudier l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre.

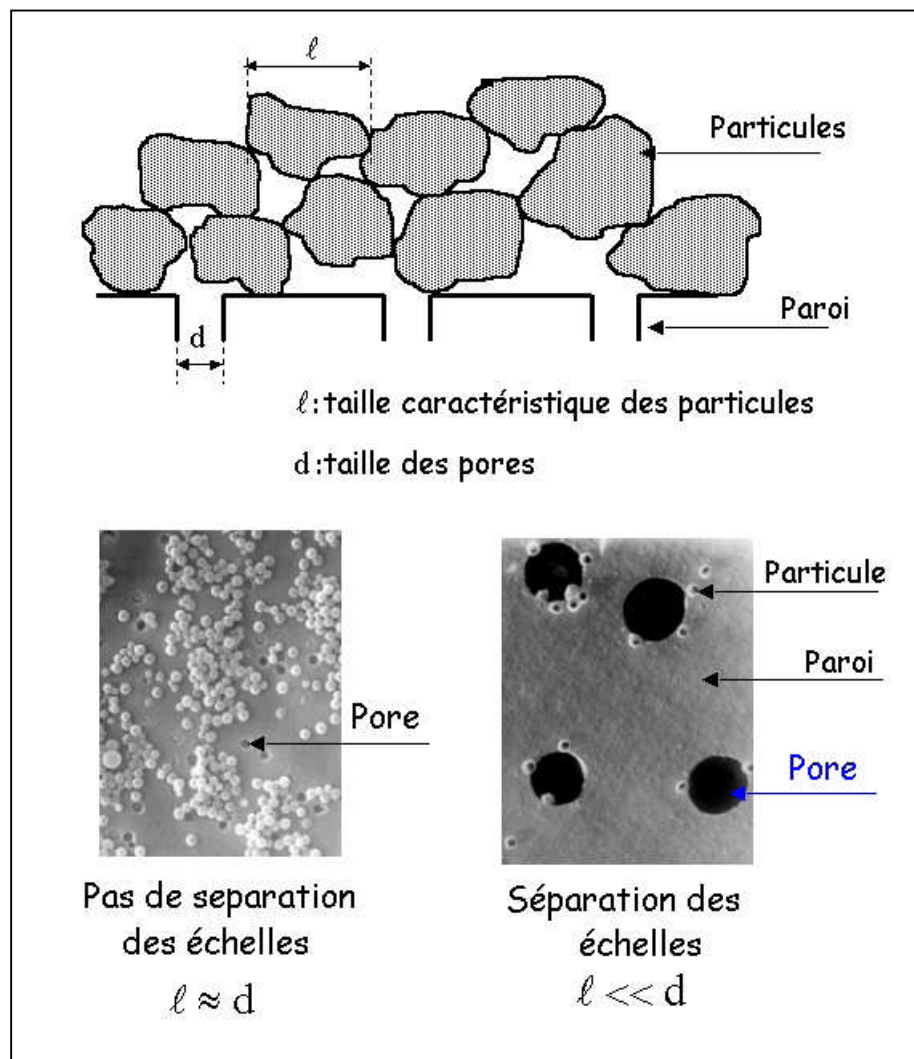


Figure 0.3. Tailles caractéristiques du système dépôt + particules

Plan du mémoire

Dans le cadre de la thèse, nous présentons tout d'abord dans le **chapitre 1** l'ensemble des mécanismes qui peuvent contribuer au dépôt de particules à la surface d'un milieu poreux. Ce chapitre a pour but de positionner le problème.

Le **chapitre 2** est une présentation à la fois générale et détaillée de la formulation mathématique d'un dépôt de particules au dessus d'une paroi poreuse constituée de pores répartis spatialement de façon périodique. En se basant sur une surface filtrante modèle, nous présentons la géométrie du domaine de calcul suivie d'une modélisation de l'écoulement sur une surface filtrante en s'appuyant sur le modèle de Darcy, puis dans un second temps nous présentons l'étude de la trajectoire d'une particule à proximité de la paroi soumise aux forces hydrodynamiques et physico- chimiques.

Afin d'étudier les premières étapes de formation du dépôt de particules sur une surface poreuse, nous nous intéressons dans le **chapitre 3** à la détermination de la densité de probabilité de capture de la première particule déposée sur une paroi poreuse modèle. Nous caractérisons l'influence de la taille de particule, de la porosité et des forces physico-chimiques sur la position de capture.

Dans le **chapitre 4**, Une simulation dynamique de la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle est présentée. Différentes microstructures de dépôt sont obtenues en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice. Les résultats sont interprétés quantitativement, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts, en terme de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées. Les résultats obtenus dans le chapitre précédant montre que notre problème d'étude est un problème très sensible à l'échelle macroscopique ainsi qu'à l'échelle microscopique aux divers paramètres. De ce fait, nous nous intéressons dans le **chapitre 5** à l'analyse de cette sensibilité tout en étudiant l'effet des paramètres du modèle sur la variation de la porosité moyenne du dépôt hétérogène obtenu. Finalement, une étude de l'évolution de la perte de charge sera déterminée dans le domaine d'étude à débit imposé.

Bibliographie

Belfort G., Davis R.H., Zydney A.L., *The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration*, Journal of Membrane Science, 96, 1-58. 1994.

Dufrêche J., *Ecoulement à travers une couche poreuse limitée par une paroi perforée: comparaison entre approche de Darcy et simulations numériques à l'échelle microscopique*, Thèse de doctorat de l'I.N.P.-Toulouse, 2000.

Dufrêche J., Prat M., Schmitz P., Sherwood J. D., *On the apparent permeability of a porous layer backed by a perforated plate*, Chemical Engineering Science, 57, 2933-2944. 2002.

Jaffrin M.Y., Ding L.H., Couvreur Ch., Khari P., *Effect of ethanol on ultrafiltration of bovine albumin solutions with organic membranes*, Journal of Membrane Science 124, 233-241. 1997.

Noël F., *Simulation directe de la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse, application à la filtration d'arrêt*, thèse de doctorat de l'I.N.P.-Toulouse, 2006.

Pinheiro I.G., Schmitz P., Houi D., *Particle capture in porous media when physico-chemical effects dominate*, Chemical Engineering Science, 54, 3801-3813, 1999.

Seminario L., Rozas R., Borques R., Toledo P.G., *Pore blocking and permeability reduction in cross-flow microfiltration*, Journal of membrane Science, 209, 121-142, 2002.

Tarabara V., Koyuncu I., Wiesner M.R., *Effect of hydrodynamics and solution ionic strength on permeate flux in cross-flow filtration: direct experimental observation of filter cake cross-sections*, Journal of membrane Science, 241, 65-78, 2004.

Wiesner, M.R. and S. Chellam, *Mass Transport Considerations for Pressure-Driven Membrane Processes in Potable Water Treatment*, Journal American Water Works Association, 83(1), 88-92. 1992.

Zeman L.J., Zydney A. L., *Microfiltration and ultrafiltration: principles and applications*, Marcel Dekker Inc. 1996.

**Chapitre 1. ETUDE
BIBLIOGRAPHIQUE : Position du
problème**

1.1 Introduction

La filtration intervient dans de nombreuses applications industrielles. Que ce soit dans le domaine automobile, aéronautique, dans le traitement des eaux ou l'agroalimentaire, l'emploi des filtres est primordial pour obtenir des fluides propres.

Lors d'une telle épuration, l'écoulement assure le transport convectif vers le filtre, des particules que l'on souhaite éliminer, et les amène à se déposer sur l'obstacle que constitue le filtre. De plus, la capture des particules dépend des conditions physico-chimiques existantes, qui agissent aussi bien sur les charges de surface des particules et du milieu poreux. Par ailleurs le mouvement Brownien et la gravité peuvent également jouer un rôle dans le transport selon la taille des particules.

La formation d'un dépôt de particules est donc fonction des forces complexes agissant sur la particule et ayant des conséquences sur les interactions particule - fluide, particule - paroi et particule - particule. La connaissance préalable de certaines caractéristiques des particules permet, a priori, d'évaluer l'influence de certaines des forces en question.

Dans ce chapitre, nous décrivons dans un premier temps le système étudié et rappelons quelques aspects concernant les forces responsables du transport et de la formation de dépôt des particules. Ensuite, nous présentons une revue de la littérature sur les différents travaux effectués sur le sujet, qui visent à modéliser le dépôt. Enfin, nous précisons les hypothèses simplificatrices conduisant au problème que nous allons traiter.

1.2 Présentation du système étudié

La filtration tangentielle, dans laquelle l'écoulement dominant des suspensions s'effectue parallèlement à la surface filtrante, a été développée afin d'éviter le dépôt des particules grâce à l'effet de cisaillement induit par le gradient de vitesse au voisinage de la paroi. Cependant, même dans ce cas, on observe une décroissance temporelle du flux de filtrat mettant en évidence un colmatage progressif du filtre.

Ce phénomène de colmatage peut avoir comme origine : le dépôt en surface ou en profondeur des particules solides, la polarisation de concentration qui modifie les propriétés physiques du fluide au voisinage de la paroi et l'adsorption des macromolécules et des ions contenus en solution. Ces mécanismes sont liés au type de particules, aux caractéristiques mécaniques et physicochimiques de la membrane ainsi qu'aux conditions hydrodynamiques.

Le travail de thèse s'inscrit dans un programme de recherche qui vise principalement à étudier le phénomène de dépôt des particules solides lors d'un écoulement parallèle à une paroi filtrante avec aspiration, c'est-à-dire l'un des facteurs prépondérants qui conduit au colmatage. Les forces qui régissent le comportement des particules en suspensions à proximité d'une paroi sont nombreuses, complexes et ont des origines multiples. On peut les classer suivant quatre grandes catégories :

- les forces liées à un champ extérieur (gravité, électromagnétisme),
- les forces physico-chimiques résultant d'interactions à courte portée,
- les forces hydrodynamiques résultant de la présence d'un écoulement,
- les forces liées à l'inertie de la particule ou du fluide,
- La diffusion brownienne.

L'intensité des forces présentes dans l'écoulement dépend essentiellement de la taille des particules.

Dans les différents problèmes que nous aborderons par la suite, nous nous intéresserons à des suspensions diluées de particules sphériques de taille micronique. De ce fait, nous n'évoquerons pas dans ce chapitre différents mécanismes qui interviennent dans des suspensions de concentration élevée et de petite taille (domaine des colloïdes). Dans ce cas, il faudrait tenir compte des interactions particule- particule que ce soit au niveau physico – chimique, qu'au niveau hydrodynamique ainsi que de la diffusion brownienne.

De plus nous nous placerons à une distance proche de la paroi filtrante telle que l'écoulement puisse être considéré comme principalement frontal, c'est-à-dire perpendiculaire à la paroi.

Forces Physico-chimiques

- Double couche électrochimique :

Des phénomènes de nature électrochimique apparaissent à l'interface particule -fluide, lorsque les particules sont mises en suspension. En général, la grande majorité des particules ont une charge de surface négative, le milieu continu, qui est chargé d'ions, cédera des ions positifs qui vont compenser la charge négative des particules. Il se crée donc une double couche électrique autour de chaque particule et par voie de conséquence une différence de potentiel entre la double couche et le cœur de la solution, où, l'équilibre électrochimique est maintenu.

Généralement, ces mécanismes de constitution de la double couche électrochimique se combinent entre eux et la structure de la double couche est beaucoup plus complexe. Plusieurs modèles sont proposés pour la décrire, comme celui de Helmholtz (1879), Gouy (1910), Stern (1924) et Grahame (1947).

La théorie de Gouy -Chapman permet d'exprimer la différence de potentiel électrique entre l'interface particule - liquide et le reste de la solution. La différence de potentiel est liée à la distance à l'interface et au paramètre κ_d qui prend en compte les conditions électrochimiques de la solution. Le potentiel est donné par :

$$V_{dc} = V_{dc0} \exp(-\kappa_d h) \quad (1.1)$$

avec V_{dc0} : le potentiel de surface

h : la distance à la surface

κ_d : la longueur réciproque de Debye.

$1/\kappa_d$ est souvent appelée épaisseur de double couche. Pour des solutions aqueuses ne comportant que des ions monovalents, on a :

$$\kappa_d = 3.28 \sqrt{I} \quad (1.2)$$

Où I est la force ionique de la solution.

Le potentiel de surface étant difficile à déterminer, il est estimé en général à partir du potentiel Zeta obtenu expérimentalement. Spielman et Cukor (1973), donnent une approximation de la force de double couche lorsque le collecteur est grand par rapport à la taille de la particule :

$$F_{dc} = \frac{\epsilon a \kappa_d e^{-\kappa_d h} \zeta_p \zeta_m}{2(1 + e^{-\kappa_d h})} \quad (1.3)$$

F_{dc} : la force de double couche

ϵ : la constante diélectrique

a : le rayon de la sphère

h : la distance à la surface

ζ_p et ζ_m : les potentiels Zeta respectifs de la particule et du collecteur

Pour de l'eau à 20°C, κ_d^{-1} vaut $3.10^{-10} I^{1/2}$ m, où I est la force ionique pour un sel monovalent en moles par litres.

- Forces de Van Der Waals:

La polarisation électrique et magnétique des molécules de deux corps suffisamment proches génère un champ électromagnétique entre les deux corps. Il en résulte une interaction entre les deux particules, caractérisée par un potentiel attracteur. De nombreux auteurs se sont intéressés à l'expression de cette force en fonction de la géométrie des deux corps (Elimelech et *al.*, 1995 ; Elzo., 1994 ; et Gohr-Pinheiro., 1996).

Dans le cas d'une interaction sphère – sphère le potentiel est donné par :

$$V_{vdw} = -\frac{A}{12} \left[\frac{a}{h} + \frac{a}{h+2a} + \ln \left(\frac{h}{h+2a} \right) \right] \quad (1.4)$$

A : la constante de Hamaker

h : la distance entre les deux surfaces de sphères

a : le rayon de sphère.

La constante de Hamaker est liée aux propriétés d'interaction entre le corps et le milieu. Typiquement, elle est comprise entre 10^{-20} et 10^{-18} J (Gregory., 1969).

Lorsque les deux sphères sont très proches, le potentiel se réduit à :

$$V_{vdw} = -\frac{Aa}{12h} \quad (1.5)$$

Par dérivation du potentiel par rapport à la distance h, Derjaguin (1941) donne directement l'expression de la force de Wan Der Waals :

$$F_{vdw} = \frac{Aa}{12 h^2} \quad (1.6)$$

- Répulsion de Born :

La répulsion de Born résulte de l'interaction à très faible distance des nuages électroniques des surfaces. Le potentiel de répulsion est donné par Ruckenstein et Prieve (1976) :

$$V_b = \frac{A\sigma_c^6}{7560} \left(\frac{8a+h}{(2a+h)^7} + \frac{6a-h}{h^7} \right) \quad (1.7)$$

σ_c : le diamètre de collision

- La théorie D.L.V.O :

La théorie D.L.V.O. doit son nom aux auteurs qui l'ont mise en œuvre : Derjaguin et Landau en 1941 puis Verwey et Overbeek en 1948.

La théorie D.L.V.O permet de quantifier l'influence sur les interactions entre surfaces de différents paramètres tels que la salinité, le potentiel électrocinétique des surfaces, les propriétés et la nature des matériaux en présence.

La compétition entre les différents effets est prise en compte à l'aide du potentiel d'interaction totale V_T égal à la somme de tous les potentiels d'interaction. On inclut en général dans ce potentiel, les attractions de Van Der Waals et les répulsions de double couche. On ajoute parfois à ces deux effets le potentiel de répulsion de Born.

La figure 1.1 montre l'évolution de l'énergie globale en fonction de la distance d'une sphère à un plan. Lorsque la distance est faible, les forces d'attraction de Van Der Waals sont prédominantes. Pour des distances de l'ordre de l'épaisseur de Debye $1/\kappa_d$, l'effet répulsif de la force de double couche est du même ordre de grandeur que l'effet attractif de la force de Van Der Waals. Il est possible qu'il soit supérieur sous certaines conditions. La sphère, en se rapprochant de la paroi, doit vaincre cette barrière de potentiel avant d'arriver au contact du plan.

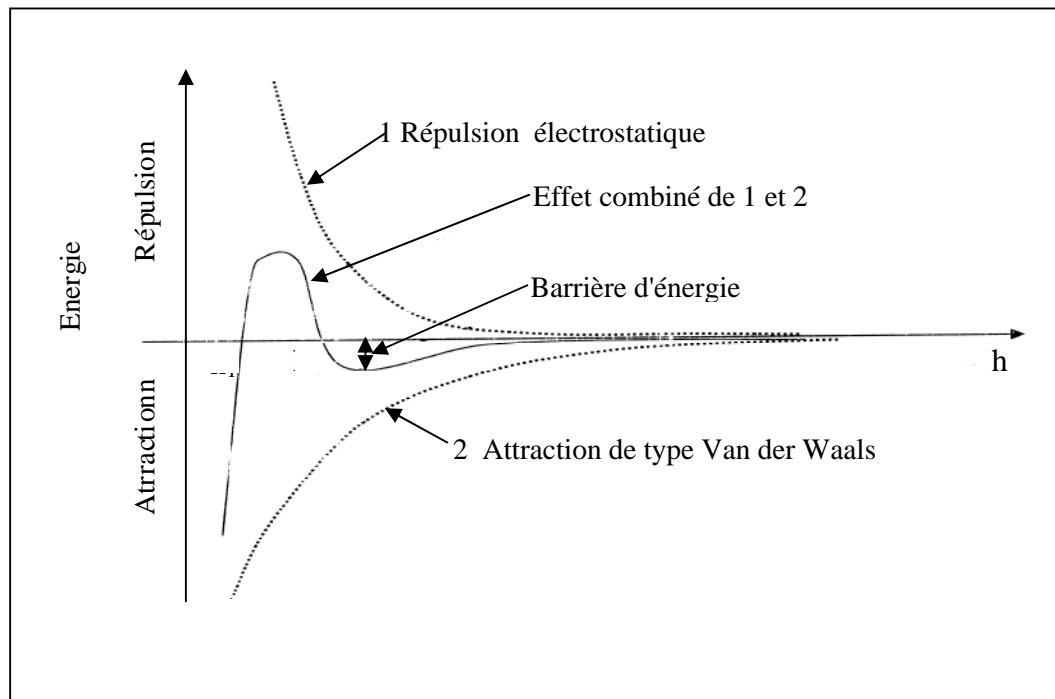


Figure 1.1. Energie d'interaction totale pour le système sphère/plan, en fonction de l'écart h entre les surfaces – d'après Elzo, 1994.

Force hydrodynamique

L'expression de la force hydrodynamique (F_h) qui s'applique sur une particule supposée sphérique dans le cas d'une suspension à faible concentration, avec un fluide newtonien en écoulement rampant uniforme en l'absence de paroi, est donnée par :

$$F_h = 6\pi\mu aU \quad (1.8)$$

Où μ : la viscosité du fluide

a : le rayon de la sphère

U : la vitesse relative du fluide.

Expérimentalement, on trouve que cette expression, appelée force de Stokes, est bien vérifiée jusqu'à un nombre de Reynolds de l'ordre de l'unité. En présence de parois, il faut corriger l'expression de cette force par l'adjonction de facteurs correcteurs dépendant de la distance à la paroi qui traduisent une répulsion visqueuse (Elimelech et al., 1995)

Force de Gravité et d'Inertie

Les particules peuvent avoir une densité différente de celle du fluide porteur. Dans ce cas, elles seront soumises aux forces d'inertie et de gravité. Les particules sont alors soumises à la sédimentation par l'action de la force de gravité. Par ailleurs, elles ne peuvent plus suivre les lignes de courant à cause de leur inertie et elles dérivent, pouvant donc entrer en contact avec le collecteur.

La sédimentation peut être négligeable pour les particules peu denses et de petite taille. Par exemple, pour les particules possédant un diamètre inférieur à 25 μm , la sédimentation est négligeable seulement si $(\rho_p - \rho_F)$ est petit et, pour des particules de diamètre supérieures à 25 μm , le phénomène de sédimentation joue un rôle très important (Herzig et al., 1970). La force de gravité F_G exercée sur la particule, compte tenu de la présence du fluide, s'écrit :

$$F_G = \frac{4}{3}\pi a^3 (\rho_p - \rho_F)g \quad (1.9)$$

g : la pesanteur

ρ_p et ρ_F : respectivement la densité de la particule et la densité du fluide.

L'expression de la force d'inertie F_{IN} est obtenue à partir de la loi de Stokes :

$$F_{IN} = \frac{4}{3}\pi a^3 \rho_p \frac{dU}{dt} \quad (1.10)$$

Forces dues aux mouvements browniens

Pour des particules de taille inférieure au micron, les effets d'agitation thermique sont importants. Ces particules sont dites browniennes. Pour les plus grosses particules, ces effets sont négligeables par rapport aux effets hydrodynamiques qui sont donc dominants (Hou, 1990). L'importance relative de ces deux effets est mesurée par le nombre de Péclet, Pe , qui fixe l'importance relative du transport de matière par diffusion et par convection. Le nombre de Péclet est exprimé par :

$$Pe = \left(\frac{6\pi\mu a^2 U}{k_B T} \right) \quad (1.11)$$

Où U est la vitesse caractéristique de l'écoulement, T est la température absolue, a est le rayon de la particule et k_B est la constante de Boltzmann.

La diffusion brownienne peut emmener les particules à des sites de rétention qui ne sont pas desservis par l'écoulement (Herzig *et al.* (1970)). Cette diffusion peut aussi entraîner la capture des particules en mouvement dans d'autres sites desservis par l'écoulement (figure 1.2).

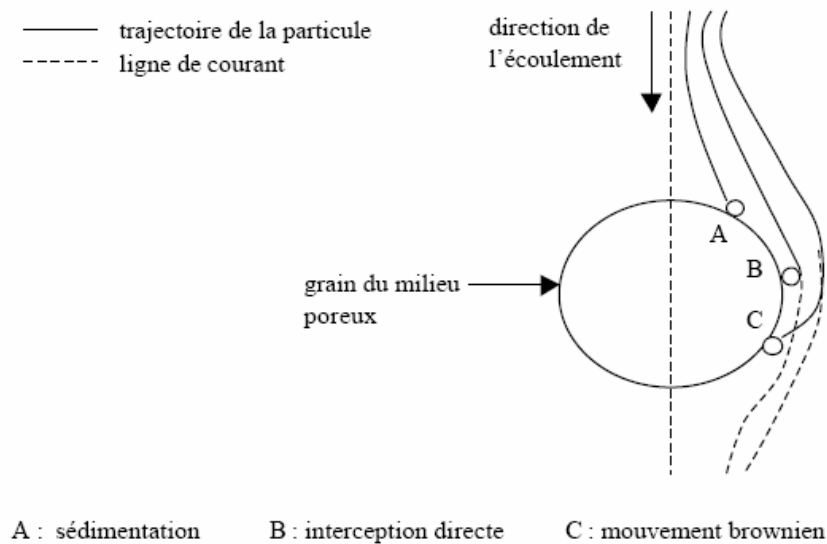


Figure 1.2. Mécanismes de capture des particules en suspension par sédimentation, interception directe ou mouvement brownien (McDowell-Boyer *et al.* (1986))

Après avoir identifié l'ensemble des forces qui peuvent s'appliquer sur une particule isolée à proximité de la paroi, on s'intéresse à notre cas particulier où les particules sont supposées sphériques, de taille microscopique, de même densité que le fluide porteur.

L'écoulement est rampant sur une paroi poreuse aspirante. Les phénomènes prépondérants qui interviennent sont :

- l'hydrodynamique,
- la force de Van der Waals,
- la force de double couche.

Dans cette approche, de nombreuses études ont été effectuées afin de déterminer l'effet des forces d'interactions sur la formation du dépôt de particules et sur l'évolution de paramètres macroscopiques au cours d'un processus de filtration.

1.3 Revue de la littérature

La filtration est un procédé de séparation solide-liquide employé couramment dans de nombreuses applications industrielles. Pour l'ensemble de ces domaines, le sujet clé consiste à mieux contrôler la formation de dépôts de particules solides sur une surface membranaire au cours d'une filtration tangentielle.

De nombreuses forces interviennent dans la construction du dépôt de particules. La connaissance préalable de certaines caractéristiques des particules permet, a priori, d'évaluer l'influence de certaines des forces et mécanismes. Selon la taille de la particule, les actions de certaines forces peuvent être négligées. Pour des particules dont le diamètre est supérieur à 10 μm , l'influence des forces hydrodynamiques est prédominante sur celle des forces physico-chimiques et du mouvement Brownien. Pour les particules plus petites que 1 μm , ce sont les forces physico-chimiques et le mouvement Brownien qui l'emportent sur les forces hydrodynamiques. Pour les particules ayant une taille comprise entre 1 μm et 10 μm , on considère que toutes les forces mentionnées peuvent, à priori, contribuer significativement à la formation du dépôt (Houi., 1990), excepté le mouvement Brownien.

Des études à l'échelle macroscopique ont permis de déterminer le comportement d'une suspension et modéliser la formation du dépôt de particules soumises à diverses forces.

Fu et *al.* (1998), ont modélisé la formation d'un dépôt, en ultrafiltration, composée d'un ensemble de 100000 particules non diffusives ayant trois diamètres différents (30, 60 et 90 nm) par la détermination de leurs trajectoires en intégrant numériquement les équations de Newton. Les auteurs introduisent en plus des interactions de type DLVO une force hydrodynamique exercée par le fluide sur la particule par le biais de la force de Stokes (hypothèse de dilution infinie). Lors de la simulation, les auteurs considèrent que la résistance

hydraulique totale du système est la somme des deux résistances (membrane + couche de particules)

Hwang et *al.* (2001), ont établi un programme numérique basé sur la simulation dynamique Brownienne afin de tracer la migration de particules binaires au cours d'une microfiltration tangentielle. Dans leurs études, les auteurs ont analysé les forces exercées sur les particules et ils ont appliqué la deuxième loi de Newton afin de simuler le comportement et les déplacements de particules situées près de la surface membranaire.

Ils ont étudié les effets des conditions opératoires et la distribution de taille des particules sur la porosité du dépôt. Le système de microfiltration étudié est représenté par un filtre construit avec deux plaques parallèles dont une est perméable. La résistance de filtration dépend de la masse et de la structure compactée du dépôt formé.

Kim et *al.* (2002) ont modélisé la structure d'un dépôt formé par filtration d'arrêt par la méthode Monte Carlo tout en prenant en compte les interactions hydrodynamiques et colloïdales. La résistance hydraulique du système (particules + paroi) est modélisée par la somme des résistances de la paroi et la couche de particules. Les auteurs mettent en évidence une dépendance directe entre la structure de la couche de particules et les paramètres physico-chimiques des particules et de la solution.

Seminario et *al.* (2002), ont modélisé un processus de microfiltration tangentielle à débit constant de particules colloïdales. Les auteurs ont considéré une distribution de taille de particules présentant un bouchage aléatoire partiel ou complet de pores présentant également une distribution de taille entraînant une augmentation de la perte de charge. Ce type d'approche présente l'avantage de pouvoir modéliser le colmatage de la paroi filtrante en tenant compte de l'hétérogénéité de la taille des pores et particules. Une confrontation de cette simulation à des résultats expérimentaux montre une très bonne adéquation des courbes de débit pour les temps long mais un écart significatif est noté pour les temps courts. Un examen microscopique du filtre met en évidence des pores complètement obstrués par des particules de tailles plus grandes ou partiellement bouchés par des particules moins grosses.

Dong et *al.* (2003), ont présenté une étude numérique de la formation du dépôt de particules en se basant sur la méthode des éléments discrets (MDE) dans laquelle l'écoulement des particules discrètes est tridimensionnel et l'écoulement du liquide continu est unidimensionnel. Le mouvement des particules est contrôlé par diverses forces comportant des interactions particule-particule dues à la collision, des forces de Van der Waals entre les particules et des interactions liquide- particules. La validité de la méthode est examinée en comparant les résultats simulés et mesurés.

Cette méthode numérique a été présentée aussi par Cheng et *al.* (2000), pour étudier les effets de différents paramètres physiques sur les structures aléatoires des particules sphériques de même dimension soumises à diverses interactions.

Yu et *al.* (2003), ont développé une équation décrivant le rapport entre la porosité et les forces inter particulaires. Cette équation a été déterminée :- sur la base des observations expérimentales, au sujet des effets de l'ajout du liquide et la taille des particules sur le dépôt, - sur des théories bien établies pour la détermination des forces capillaires et de van der waals. Deux systèmes sont considérés : dépôt de grosses particules, où la force dominante est la force capillaire, et dépôt de fines particules, où la force dominante est celle de Van der Waals. Les corrélations entre la porosité, la force capillaire et le contenu de liquide sont d'abord discutées en liaison avec les travaux récents de Feng et de Yu (2000). Le rapport résultant entre la porosité et la force capillaire est alors appliqué au dépôt des particules fines, menant à un rapport généralisé entre la porosité et les forces inter particulaires. L'équation proposée indique que le comportement macroscopique du dépôt peut être lié aux forces microscopiques interparticules.

Toutes les simulations faites dans la littérature, à notre connaissance, prédisent qualitativement et quantitativement la résistance hydraulique ainsi que la structure de la couche de particules en fonction des paramètres physico chimiques des particules et de la paroi lorsque le dépôt est épais. Ces études, qui visent à modéliser le dépôt, ne tiennent pas compte de l'aspect discret de la paroi poreuse lorsqu'on se place à l'échelle du pore mais considèrent la paroi poreuse comme homogène (Song et Elimelech, 1995 ; Kleinstrauer et Chin, 1984 ; Hung et Tien, 1976). En effet, ces travaux s'appuient généralement sur l'hypothèse d'additivité des résistances hydrauliques, respectivement du filtre et du dépôt de particules. De plus, la résistance hydraulique du dépôt est prise égale à sa résistance hydraulique intrinsèque, c'est à dire sans tenir compte de la présence de la paroi filtrante.

Si ces simulations sont valables lorsqu'une couche suffisamment épaisse de particules s'est déposée, l'effet de paroi sur la perméabilité apparente du milieu poreux, qui constitue une couche mince de particules déposées, est à prendre en compte. Les travaux engagés sur ce sujet par Dufrêche (2000) ont déjà permis de caractériser l'écart de la perméabilité apparente par rapport à la perméabilité donnée par le modèle de Darcy en fonction de la disposition des particules sur la paroi poreuse, de la taille relative des particules par rapport au diamètre des pores et de la hauteur de la couche de particules. En effet, l'écoulement de Stokes à travers un dépôt constitué par l'empilement de particules sur une surface poreuse, rencontré en filtration,

est classiquement modélisé par le modèle de Darcy. Cependant, l'effet de singularités géométriques sur l'interface dépôt-surface poreuse peut mettre en défaut le modèle de Darcy lorsque la taille caractéristique des pores de la surface est de l'ordre de la taille des grains ou des pores du dépôt (pas de séparation des échelles).

D'autres auteurs ont pris en compte explicitement l'aspect discret de la paroi poreuse. Schmitz et al. (1993), notamment, ont développé un modèle qui simule l'accumulation d'un grand nombre de particules sur une paroi poreuse spatialement périodique. Les interactions hydrodynamiques et physico-chimiques entre particule et paroi, et particules entre elles, étaient prises en compte au moyen de règles simples de déplacement et de capture de particules. Cette étude, volontairement simplifiée d'un point de vue hydrodynamique, a permis d'analyser la morphologie du dépôt en fonction des paramètres du modèle et de simuler qualitativement des dépôts proches de ceux qu'on peut observer expérimentalement. Mais, en raison de son caractère bidimensionnel, elle n'a pas permis de déterminer les propriétés de transport d'un dépôt de particules sur une paroi filtrante.

Dans la même thématique, Frey (1998) a caractérisé les interactions hydrodynamiques que subit une particule qui se déplace à proximité d'une paroi, en régime de Stokes. Une étude numérique au cours d'une filtration en masse, a permis de modéliser le transport de particules sphériques à l'échelle des pores d'un milieu poreux modèle. En filtration tangentielle, l'interaction entre la paroi poreuse filtrante et des particules sphériques en suspension a été analysée.

L'étude de la formation du dépôt, lorsque la taille des particules devient du même ordre que la taille des pores de la paroi filtrante ou encore lorsque le nombre de particules formant le dépôt est faible (problème de la première couche), ne peut pas en principe s'appuyer sur les équations homogénéisées telles que les équations de Darcy ou Brinkman en raison de la perte de séparation des échelles. L'approche naturelle est alors de se baser directement sur la résolution de Stokes (Simulation directe). Toutefois, ce type d'approche est très lourd à mettre en œuvre (Frey, 1998) et peu opérationnel dans la perspective d'étude statistique faisant intervenir plusieurs pores et plusieurs particules en mouvement. Pour ces raisons, Noël (2006) a modélisé la formation d'un dépôt de particules sphériques par la simulation de la formation d'un dépôt en trois dimensions par l'équation de Brinkman. Cette méthode consiste à lâcher une par une des particules dans le domaine. Les particules suivent les lignes de courant jusqu'à leur immobilisation lorsqu'elles entrent en contact avec la paroi ou une autre particule déjà déposée. L'écoulement, dans le domaine fluide faiblement concentré en particules et au sein de la couche de particules déposées, est recalculé par

l'équation de Brinkman après chaque dépôt de particule. Cette approche semble être un bon compromis entre les approches simplistes du point de vue hydrodynamique et les approches plus rigoureuses de type simulation numérique directe car elle permet de prendre en compte l'influence des particules sur l'écoulement. L'étude préliminaire a permis d'évaluer l'influence de la taille des particules et des pores de la paroi sur des paramètres macroscopiques telle que l'évolution du débit en fonction du volume déposé, de la compacité moyenne du dépôt et de l'efficacité de filtration.

Bien que la méthode de Noël (2006) permette, grâce à l'équation de Brinkman de résoudre l'écoulement sans avoir à décomposer le domaine en deux parties : la partie fluide transportant les particules (écoulement de Stokes) et la partie dépôt (écoulement de Darcy ou Darcy-Brinkman), elle reste préliminaire vu l'absence des forces d'interactions physico-chimique. la méthode utilisée est basée sur le modèle de contact-capture.

A notre connaissance, aucune étude prenant en compte toutes les forces d'interactions particule – particule et particule – paroi n'a encore été effectuée, pour le calcul des trajectoires de particules ainsi que la modélisation de la formation du dépôt de particules, dans un écoulement cisailé, à proximité d'une paroi poreuse aspirante.

1.4 Positionnement du problème

Afin de modéliser la couche de particules sur une surface filtrante, on considère que le système est constitué d'une paroi perforée sur laquelle repose une couche poreuse hétérogène. On suppose que la paroi est constituée de pores identiques répartis périodiquement suivant un arrangement carré (voir figure 1.3). Cette dernière simplification permet de limiter l'étude de l'écoulement à un élément unitaire, représentatif de la paroi perforée, constitué d'une paroi comportant un seul pore, muni de conditions aux limites périodiques (Schmitz, 1990).

Dans cette approche, nous supposons que la suspension est faiblement concentrée d'une part, et que les particules sont suffisamment petites d'autre part (quelques micromètres), afin de négliger la perturbation de l'écoulement due à la présence de particules en suspension. Nous pouvons ainsi admettre que le champ hydrodynamique, déterminé en l'absence de particules en suspension, est représentatif de l'écoulement de cette suspension au voisinage de la paroi filtrante.

D'autre part, en raison de la proximité de la paroi, l'échelle de vitesse est très faible. Dans ces conditions, le nombre de Reynolds local, calculé à partir de ces échelles, est bien inférieur à 1, ce qui conduit à supposer l'écoulement rampant.

Dans cette étude, nous effectuons le calcul de trajectoires de particules soumises simultanément à une force d'entraînement (hydrodynamique), une force attractive (Van der Waals) et une force répulsive (Double couche). En raison de leur taille, les particules, qui sont de même densité que le fluide, sont supposées suivre les lignes de courant jusqu'au voisinage de la paroi où elles sont influencées par les forces physico-chimiques. L'hydrodynamique est prise en compte par l'intermédiaire de la seule force de traînée visqueuse.

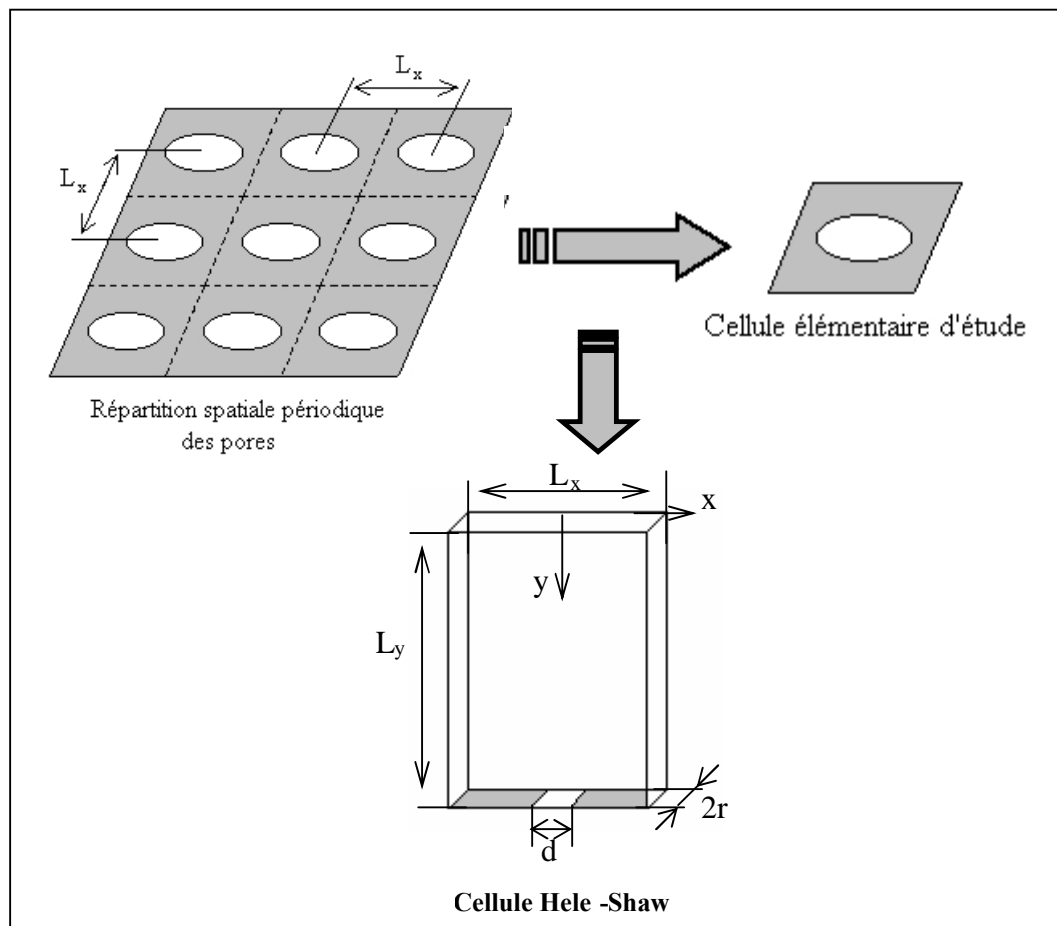
En absence de séparation d'échelle, l'écoulement stationnaire local au voisinage d'un pore est régi par les équations de Stokes. Toutefois, ce type d'approche ne permet pas d'étudier la morphologie du dépôt de particules obtenue au cours d'une filtration tangentielle (Frey, 1998). Une approche quasi bidimensionnelle a été explorée donc, où le domaine est restreint à une cellule Hele-Shaw dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule, de telle sorte que le modèle de Darcy puisse s'appliquer sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Ce domaine est représenté par un champ de perméabilité non uniforme qui prend en compte l'arrangement local des particules au sein du dépôt au fur et à mesure qu'il se forme (voir annexe. A).

1.5 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de présenter certaines forces qui agissent sur le transport et la formation du dépôt de particules se déplaçant sur une surface filtrante. En effet, lors de l'étude d'un problème de trajectoire de particules avec une telle approche, il est nécessaire de bien évaluer les différents phénomènes qui entrent en jeu.

La géométrie du domaine et la dimension de l'espace vont conditionner, en grande partie, le type de formulation choisi pour exprimer les équations qui régissent le mouvement de fluide. Les forces qui s'appliquent à une particule sont nombreuses et sont parfois difficiles à déterminer précisément.

Il est cependant possible d'estimer à priori l'ordre de grandeur des forces en présence. La connaissance de paramètres comme la taille et la nature des particules, le régime de l'écoulement permet d'évaluer les intensités des forces.

**Figure 1.3.** Modélisation de la surface filtrante

Bibliographie

Altena F.W., Belfort G., *Lateral migration of spherical particles in porous wall channels: applications to membrane filtration*, Chem. Eng. Sci, 39, 343, 1984.

Benkahla Y.K., Oul-Dris A., Jaffrin M.Y., Si-Hassen D., *Cake growth mechanism in cross-flow microfiltration of mineral suspensions*, Journal of membrane Science, 98, 107, 1995.

Cheng Y.F., Guo S.J., Lai H.Y., *Dynamic simulation of random packing of spherical particles*, Powder Technology, 107, 123-130, 2000.

Derjaguin B. V., and Landau L. D., *Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and of the adhesion of strongly charged particles in solution of electrolytes*. Acta Physicochim. URSS, 14, 733-762, 1941.

Dong K.J., Yang R.Y., Zou R.P., Yy A.B., Roach G., Jamieson E, *Simulation of the cake formation and growth in sedimentation and filtration*, Third International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries, 2003

Dufrèche J., *Ecoulement à travers une couche poreuse limitée par une paroi perforée: Comparaison entre approche de Darcy et simulations numériques à l'échelle microscopique*, thèse de doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 2000.

Elimelech M., Gregory J., Jia X., and Williams R., *Particle deposition and aggragation : measurement, modelling and simulation*, Butterworth Heineman, Oxford, 1995.

Elzo D., *Etude théorique et expérimentale de l'adhésion de particules de taille micronique sur une surface plane*, thèse de doctorat de l'Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 1994.

Fane A.G., Fell C.J.D., Nor M.T., *Ultrafiltration/activated sludge system-development of a predictive model*, in: A.R.Cooper(Ed.), *Ultrafiltration Membranes and Applications*, Plenum Press, New York, pp. 631-658, 1980.

Frey J., *Interactions hydrodynamiques entre particules et paroi en écoulement de stokes : Application à la filtration*. Thèse de doctorat de l'I.N.P.T, 1998.

Fu F., Dempsey B., *Modeling the effect of particle size and charge on the structure of the filter cake in ultrafiltration*, Journal of membrane Science, 149, 221-240, 1998.

Gohr-Pinheiro I., *Transport de dépôt de particules en milieu poreux : de l'échelle du pore à l'échelle macroscopique*. Thèse de doctorat de l'I.N.P.T, 1996.

Gouy., Journ. de Phys., p. 457. 1910.

Grahame D.C., *The electrical double layer and the theory of electrocapilarity*, Chem. Rev., 41, 441-501, 1947.

Gregory J., *The calculation of hamaker constants*. Adv. Colloid Interface Sci., 2, 396-417, 1969.

Helmholtz., Wied Ann. 7, p. 337. 1879.

Herzig J.P., Leclerc D.M and Le Goff P, *Flow of suspension through porous media: application to deep bed filtration*, Ind. Eng. Chem, 62 (5), 8-35, 1970.

Hong S., Faibish R.S., Elimelech M., *Kinetics of permeate flux decline in cross-flow membrane filtration of colloidal suspensions*, J. Colloid Interf. Sci, 196, 267, 1997.

Houi D., *Filtration and porous media*, in Hulin J.P., Cazabat A.M., Guyon E. and Carmona F. (ed), Hydrodynamics of dispersed media, Elsevier. 1990.

Huisman I.H., Elzo D., Middlelink E, Trägårdh A.C., *Properties of the cake layer formed during cross -flow microfiltration*, Colloids Surf, 138, 265, 1998.

Hung C.C., Tien C., *Effect of particle deposition on the reduction of water flux in reverse osmosis*, Desalination, 18, 173, 1976.

Hwang K.J., Wang Y.S., Numerical simulation of particle deposition in cross-flow microfiltration of binary particles, Journal of Science and Engineering, 2, 119-125, 2001.

Kim A.S., Hoek E.M.V., *Cake structure in dead-end membrane filtration: monte carlo simulations*, Environmental Engineering Science, 19, 6, 373-386, 2002.

Kleinstrauber C., Chin T.P., *Analysis of multiple rajectoies and eposition layer growth in porous conduits*, Chem. Eng. Commun, 28, 193, 1984.

Leonard E.F., Vassilief C.S., *The deposition of rejected matter in membrane separation processes*, Chem. Eg. Commun, 30, 209, 1984.

Noël F., *Simulation directe de la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse, application à la filtration d'arrêt*, thèse de doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 2006.

Porter M.C., *Concentration polarisation with membrane ultrafiltration*, Ind. Chem. Prod. Res. Dev, 11, 107, 1972.

Rautenbach R., Schock G., *Ultrafiltration of macro-molecular solutions and cross-flow microfiltration of colloidal suspension: a contribution tp permeate flux calculations*, J. Membr. Sci, 36, 231, 1988.

Rodier E., Leclerc D., And Dodds J.A., *The filtration of model colloids in beds of spheres*, in 6 th World Filtration Congress, Nagoya, 232 – 235, 1993.

Romero C.A., Davis R.H., Global model of cross-flow microfiltration based on hydrodynamic particle diffusion, J. Membr. Sci, 39, 157, 1988.

Ruckenstein and Prieve., *Adsorption and desorption of particle and their chromatographic separation*. AIChE, 22, 276-283, 1976.

Salehi N., *Mécanismes de rétention hydrodynamique de suspensions colloïdales en milieu poreux modèles*, thèse de doctorat de l'université de Paris-Sud, 1996.

Schmitz P., Wandelt B., Hildenbrand M., *Particle aggregation at the membrane surface in crossflow microfiltration*, Journal of membrane Science, 84, 171-183, 1993.

Seminario L., Rozas R., Borques R., Toledo P.G., *Pore blocking and permeability reduction in cross-flow microfiltration*, Journal of membrane Science, 209, 121-142, 2002.

Song L., Elimelech M., *Particle deposition onto a permeable surface in laminar flow*, J. Colloid Interf. Sci, 173, 165, 1995.

Spielman L. and Cukor P.M., *Deposition of non brownian particles under colloidal force*, J. Coll. Int; Scie., 1, 43-51, 1973.

Stern Z., Electrochem., 30, P. 508. 1924.

Tung K.L., Chuang C.J., *Effect of pore morphology on fluid flow and particle deposition on track-etched polycarbonate*, Desalination, 146, 129-134, 2002.

Yu A.B., Feng C.L., Zou R.P., Yang R.Y., On the relationship between porosity and interparticle forces, Powder Technology, 130, 70-76, 2003.

Zeman L.J., Zydney A.L., *Microfiltration and ultrafiltration: principles and applications*, Marcel Dekker Inc, 1996.

Zydney A.L., Colton C.K., *A concentration polarisation model for the filtration flux in cross-flow microfiltration of particulate suspensions*, Chem. Eng. Commun, 47, 1, 1986.

Chapitre 2. MODELISATION NUMERIQUE DE LA FORMATION DU DEPOT : SANS SEPARATION D'ECHELLE

2.1 Introduction

Dans le contexte industriel de la filtration, le processus dit « tangentiel », dans lequel la suspension circule parallèlement au milieu filtrant, a été développé afin d'éviter le dépôt des particules qui se déroule habituellement en filtration frontale grâce à la présence du cisaillement de vitesse. Malheureusement, on observe toujours une décroissance temporelle du flux de filtrat, mettant en évidence la baisse de la perméabilité du milieu filtrant due à la présence d'un dépôt. La question de la filtration est donc de trouver un compromis convenable entre le nombre de particules que l'on souhaite capturer et la chute de perméabilité qui en résulte. Il est alors intéressant de comprendre comment vont s'agréger les particules afin de minimiser les pertes de charge au travers du bloc filtrant, et, par la même occasion, d'augmenter la durée de vie du filtre.

Différents problèmes scientifiques (figure 2.1) interviennent lors d'un processus de filtration régissant le comportement des particules en suspensions :

- hydrodynamique : détermination de l'écoulement du fluide à proximité du filtre,
- transport solide : caractérisation des trajectoires des particules,
- agrégation de particules : évolution et caractérisation de la forme du dépôt,
- adhésion de particules : détermination des interactions physico-chimiques entre particules et interaction particules/collecteur,
- transfert de masse en milieux poreux : modélisation de l'écoulement à travers le dépôt.

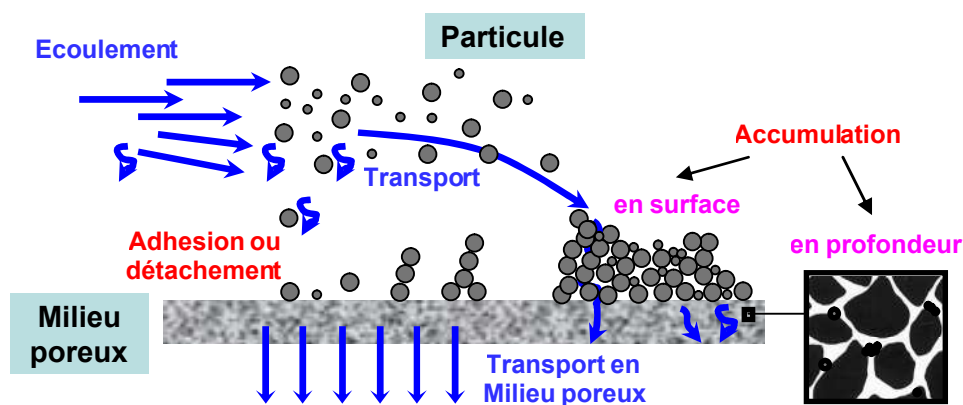


Figure 2.1 Champs d'application lors d'un processus de filtration.

De nombreux travaux ont été consacrés à comprendre et contrôler la formation du dépôt de particules solides sur les surfaces collectrices, mais jusqu'à présent l'étude des effets des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de

transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre n'étaient pas prise en compte (voir chapitre I).

Dans le but de mieux étudier le phénomène du dépôt de particules à proximité d'une paroi filtrante, nous présentons tout d'abord une revue de littérature sur la caractérisation de l'écoulement au dessus d'une paroi poreuse constituée de pores répartis spatialement de façon périodique. En nous basant sur une surface filtrante modèle, nous présentons la modélisation de la formation d'un dépôt de particules au niveau d'un pore. Dans un premier temps nous présentons la géométrie du domaine de calcul suivie d'une modélisation de l'écoulement sur une surface filtrante en nous appuyant sur la loi de Darcy, puis dans un second temps nous présentons l'étude de la trajectoire d'une particule à proximité de la paroi soumise aux forces hydrodynamiques et physico- chimiques.

2.2 Ecoulement à proximité d'un pore

La géométrie du problème est décrite sur la figure 2.2.

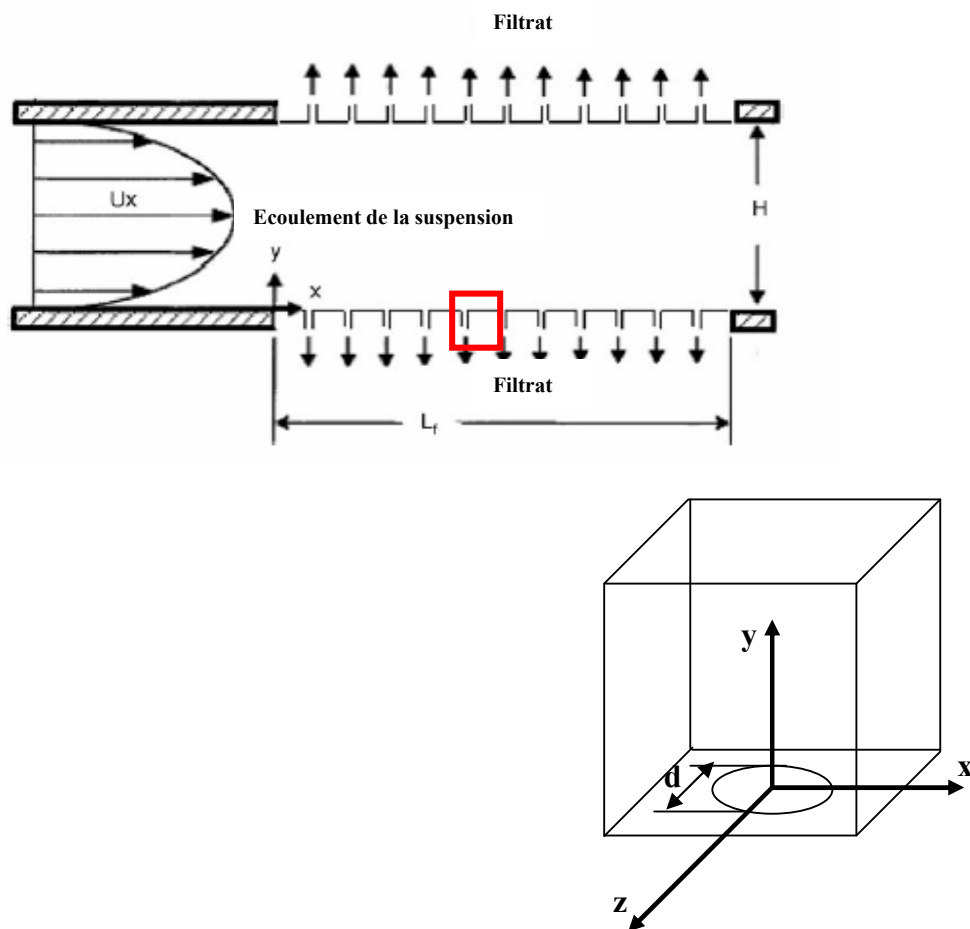


Figure 2.2 Géométrie du problème et changement d'échelle

L'étude de l'écoulement d'une suspension de particules faiblement concentrée sur une paroi poreuse est fréquemment rencontrée en filtration tangentielle (Belfort., 1994). La détermination de l'écoulement apparaît comme le premier pas nécessaire vers la compréhension et l'optimisation de ce système.

Le problème de l'hydrodynamique peut être envisagé à différentes échelles. A l'échelle macroscopique, la paroi poreuse est considérée comme homogène. La solution ne tient pas compte de la géométrie des pores. L'effet de la porosité de la paroi est pris au sens d'une moyenne sur un volume représentatif. Différentes situations peuvent être rencontrées en fonction de nombreux paramètres comme la répartition de l'injection ou de l'aspiration le long de la paroi, la perméabilité de la paroi, etc. (Chatterjee et Belfort., 1986). La solution du problème dans le cas d'une aspiration uniforme le long de la paroi poreuse d'un canal plan a été déterminée par Berman (1953) dans la plage des nombres de Reynolds d'aspiration conduisant à l'existence de solutions similaires. Cependant, le comportement des particules en suspension, au voisinage d'une paroi poreuse, est fortement conditionné par la nature discrète de la paroi. Il convient alors de s'intéresser également à l'écoulement à l'échelle du pore. Dans ce cas, la solution doit tenir compte des singularités de la paroi poreuse. Dans ce chapitre, nous nous placerons à cette échelle microscopique.

Schmitz et Prat (1995) ont caractérisé l'écoulement au dessus d'une paroi poreuse constituée de pores répartis spatialement de façon périodique. La cellule périodique est constituée d'une surface plane comportant un pore circulaire de longueur finie. Ils ont montré qu'à proximité de la paroi poreuse, l'écoulement du fluide résulte de la combinaison de deux écoulements :

- un écoulement frontal, dépendant de l'intensité de l'aspiration,
- un écoulement cisailé, dont la vitesse caractéristique dépend de l'écoulement macroscopique loin de la paroi.

Les auteurs ont utilisé une méthode aux éléments finis pour déterminer l'écoulement tridimensionnel dans cette cellule. Cette technique étant coûteuse en temps de calcul et en espace mémoire. Par conséquent, une méthode simplifiée, basée sur l'hypothèse d'écran mince percé d'orifices circulaires et la collocation d'un système numérique (Wang, 1994), a été employée par Frey et *al.* (1999) afin de déterminer l'écoulement de Stokes dans une cellule unitaire représentative d'une membrane modèle. Par la suite, en se basant sur un milieu poreux modélisé par un réseau périodique de cylindres présentant un arrangement carré, un modèle aux éléments de frontière de l'écoulement de Stokes utilisant des éléments circulaires originaux, a été développé et validé (Dufrêche., 2000) pour étudier, par simulation

directe à l'échelle des pores, la perméabilité apparente d'une couche poreuse limitée par une paroi perforée, lorsqu'il n'y a plus séparation d'échelle au voisinage des perforations. Les résultats obtenus ont, en particulier, montré la dépendance de la perméabilité apparente réduite avec les échelles de la microstructure (contrairement au cas Darcy) lorsque la séparation d'échelle n'est plus assurée. Afin d'offrir un gain en place mémoire très important, par rapport à la simulation directe sur l'ensemble du domaine (milieu poreux + partie fluide), Dufrêche a présenté une modélisation à double échelle de l'écoulement à travers une couche poreuse limitée par une paroi. Ce modèle couple la résolution des équations microscopiques de Stokes sur une zone proche du rétrécissement, à la résolution du modèle macroscopique de Darcy sur le reste du domaine. La perméabilité apparente évaluée par le modèle à double échelle converge vers la valeur référence donnée par le modèle de Stokes lorsque la taille du domaine microscopique croît. Cette convergence est d'autant plus rapide que la concentration est forte et que l'ouverture en sortie est grande.

Dans le même cadre, où l'hypothèse de séparation d'échelle n'est plus vérifiée, Weinbaum et *al.* (1990), font une revue des techniques de développement multipolaires et des méthodes intégrales pour les écoulements de Stokes. Etant donné que l'équation de Stokes est linéaire et que les particules sont en mouvement, la méthode la plus précise à mettre en œuvre est la méthode des éléments frontières (Pozrikidis, 2002). Seule la surface des particules et la frontière du domaine sont maillées. Cependant lorsque le nombre de particules est important ou lorsque les particules sont très proches les une des autres ou d'une frontière du domaine, il est nécessaire d'augmenter la taille du maillage pour obtenir une solution précise (les forces de lubrification divergent lorsque les surfaces solides se rapprochent). La simulation, par cette méthode, de deux particules s'approchant d'un pore dans un écoulement imposé a permis de mettre en évidence des interactions hydrodynamiques (Frey et *al.*, 2000). Afin de diminuer le nombre d'éléments de frontières nécessaires à un calcul précis, Nasser et *al.* (2000) introduisent les forces de lubrification, déterminées par la résolution exacte de deux particules sphériques dans un écoulement de type Stokes, dans la formulation intégrale de l'équation de Stokes. Bien que les auteurs aient réussi à simuler les mouvements de 729 particules dans un écoulement cisailé, les calculs étaient effectués sur 28 calculateurs en parallèles. Le temps nécessaire au calcul du déplacement de 125 particules sur 30 pas de temps a nécessité 12 h de calcul.

Maxey(2001), Lomholt (2003) et Dance (2003) ont développé une méthode de transport de particules lorsque le nombre de Reynolds de particules est dans la gamme $0 < Re_p < 20$. Dans cette méthode les particules sont modélisées par un terme de force de volume

dans l'équation de Navier-Stokes. Ce terme est représenté par une fonction continue définie à l'aide des forces et moments exercés par les particules sur le fluide. La méthode devient imprécise lorsque les particules sont proches entre elles ou des parois. Ainsi les mêmes auteurs incorporent des forces de lubrification (Zick., 1982) afin de mieux rendre compte des interactions hydrodynamiques à courte distance entre particules et entre particules et parois. Cependant les auteurs constatent, d'une part, que la méthode n'est précise que pour les systèmes ayant une faible fraction volumique ($\approx 10\%$), et d'autre part, qu'elle reste lourde en temps de calcul.

Dans ces méthodes présentées, la prise en compte de la géométrie du pore dans le calcul de l'écoulement est extrêmement complexe. En effet, la prise en compte des interactions hydrodynamiques d'une particule et d'un pore dans le cas où la particule est soit en approche du pore ou est déposée sur la paroi n'est pas documentée. Ce pendant, ce type d'approche (résolution de Stokes) est très lourd à mettre en œuvre (Frey., 1998) et peu opérationnel dans la perspective d'étude statistique faisant intervenir plusieurs pores et plusieurs particules en mouvement.

Pour ces raisons, Noël (2006) a exploré les possibilités d'une approche moins rigoureuse mais moins exigeante en terme de ressources informatiques s'appuyant sur l'équation de Brinkman. Dans son étude, la modélisation de la formation d'un dépôt de particules sphériques a été mise en oeuvre par la simulation de la formation d'un dépôt en trois dimensions par l'équation de Brinkman. Cette méthode consiste à lâcher une par une des particules dans le domaine. Les particules suivent les lignes de courant jusqu'à leur immobilisation lorsqu'elles entrent en contact avec la paroi ou une autre particule déjà déposée. L'écoulement, dans le domaine fluide faiblement concentré en particules et au sein de la couche de particules déposées, est recalculé par l'équation de Brinkman après chaque dépôt de particule. Cette approche semble être un bon compromis entre les approches simplistes du point de vue hydrodynamique et les approches plus rigoureuses de type simulation numérique directe car elle permet de prendre en compte l'influence des particules déposées sur l'écoulement. L'étude a permis d'évaluer l'influence de la taille des particules et des pores de la paroi sur des paramètres macroscopiques telle que l'évolution du débit en fonction du volume déposé, de la compacité moyenne du dépôt et de l'efficacité de filtration. Bien que la méthode proposée par Noël ait permis, grâce à l'équation de Brinkman, de résoudre l'écoulement sans avoir à décomposer le domaine en deux parties : la partie fluide transportant les particules (écoulement de Stokes) et la partie dépôt (écoulement de Darcy ou

Darcy-Brinkman), elle reste préliminaire vu l'absence d'étude d'impact des règles de capture et plus généralement de l'impact des forces d'interactions physico-chimiques.

L'approche que nous proposons est la modélisation, à l'échelle des pores, de la formation de dépôt de particules solides sur une paroi filtrante au cours d'un processus de filtration. Nous nous proposons également d'étudier l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport d'un dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre.

Devant la complexité de l'étude du calcul de l'écoulement en présence d'une paroi discrète où la méthode Stokesienne ne permet pas d'étudier la structure du dépôt obtenue, nous avons exploré la possibilité d'une approche quasi-bidimensionnelle où le domaine fluide et le domaine poreux sont restreint à une cellule considérée comme un modèle analogue d'un milieu poreux bidimensionnel nommée « cellule de hele-shaw ». Cette analogie est basée sur la possibilité d'exprimer le débit moyen, à travers l'épaisseur ($2r$) de la cellule par l'équation de Darcy. Dans ce contexte, la perméabilité équivalente de ce système est proportionnelle à $(2r)^2$.(figure 2.2).

2.3 Modélisation de la paroi filtrante

Nous considérons le cas d'un écoulement bidimensionnel, dans le domaine présenté sur la figure 2.3. Le domaine géométrique d'étude est constitué d'une cellule Hele - Shaw rectangulaire de dimensions L_x et L_y et d'épaisseur $2r$, où r est le rayon d'une particule, comportant une paroi présentant un pore de largeur d .

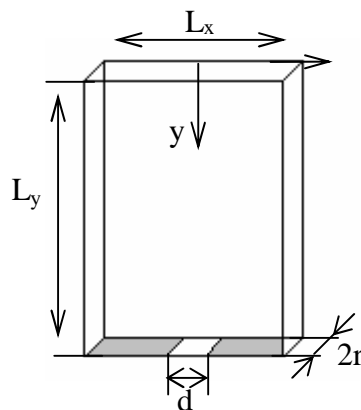


Figure 2.3 Modèle de la paroi : Cellule Hele-Shaw

En supposant que l'écoulement est suffisamment lent pour que l'hypothèse d'écoulement rampant soit vérifiée, l'équation qui régit l'écoulement dans l'ensemble du domaine est l'équation de Darcy :

$$\vec{U}_f = -\frac{K(x,y)}{\mu} \vec{\nabla} P \quad (2.1)$$

où μ est la viscosité dynamique du fluide, P la pression, \vec{U}_f la vitesse du fluide et K la perméabilité apparente du milieu variant en fonction de la microstructure résultant de l'agencement des particules à l'échelle du Volume Élémentaire Représentatif.

En utilisant l'équation locale de conservation de la masse, il vient :

$$\vec{\nabla} \cdot [K(x,y) \vec{\nabla} P] = 0 \quad (2.2)$$

Le fluide s'écoule dans la direction y sous l'action d'une différence de pression $P_1 - P_0$ imposée. P_1 est la pression à l'amont et P_0 est la pression au niveau du pore, elles sont supposées uniformes.

Les conditions limites associées sont alors :

- sur la frontière supérieure du domaine :

$$P(x,0) = P_1 \quad (2.3)$$

- sur le pore :

$$P\left[|x| < \frac{d}{2}, L_y\right] = P_0 \quad (2.4)$$

- sur la paroi solide :

$$\frac{\partial P}{\partial y}\left(|x| > \frac{d}{2}, L_y\right) = 0 \quad (2.5)$$

- sur les frontières périodiques:

$$\frac{\partial P}{\partial x}\left(\pm \frac{L_x}{2}, y\right) = 0 \quad (2.6)$$

La perméabilité dans la région fluide est celle d'une cellule Hele - Shaw :

$$K_{HS} = \frac{(2.r)^2}{12} \quad (2.7)$$

La perméabilité dans le dépôt est calculée à partir de l'expression proposée par Tsay et Weinbaum (1991) en fonction du rayon des particules et de la porosité ε :

$$K_d = K_p \left(1 - \frac{\sqrt{K_p}}{r} \tanh \left[\frac{r}{\sqrt{K_p}} \right] \right) \quad (2.8)$$

$$\text{avec } K_p = 0.0572 r^2 \Delta^{2.377} \text{ et } \Delta = 2 \left[\sqrt{\frac{\pi}{\frac{8}{3}(1-\varepsilon)}} - 1 \right]$$

Etant donné qu'on impose la différence de pression, on procède à l'adimensionnalisation suivante. Prenant L_x comme longueur caractéristique et la vitesse de Hele - Shaw U_{HS} comme vitesse caractéristique, les variables sans dimension peuvent être exprimées comme :

$$L'_x = \frac{L_x}{L_x}, L'_y = \frac{L_y}{L_x}, d' = \frac{d}{L_x}, r' = \frac{r}{L_x}, \quad (2.9)$$

$$K' = \frac{K}{L_x r}, P' = \frac{P - P_0}{\rho U_{HS}^2}$$

avec:

$$U_{HS} = \frac{K_{HS}}{\mu} \frac{P_1 - P_0}{L_x} \quad (2.10)$$

Le système d'équation (2.1) à (2.6) devient alors :

$$\vec{U}'_f = -K'(x', y') R_e \vec{\nabla} P' \quad (2.11)$$

$$\vec{\nabla} \cdot [K'(x', y') \vec{\nabla} P'] = 0 \quad (2.12)$$

$$\text{avec } R_e = \frac{\rho \cdot U_{HS} \cdot r}{\mu} \quad (2.13)$$

- sur la frontière supérieure du domaine :

$$P'(x', 0) = 1 \quad (2.14)$$

- sur le pore :

$$P' \left[\left| x' \right| < \frac{d'}{2}, L'_y \right] = 0 \quad (2.15)$$

- sur la paroi solide :

$$\frac{\partial P'}{\partial y'} \left(\left| x' \right| > \frac{d'}{2}, L'_y \right) = 0 \quad (2.16)$$

- sur les frontières périodiques :

$$\frac{\partial P'}{\partial x'} \left(\pm \frac{1}{2}, y' \right) = 0 \quad (2.17)$$

2.4 Trajectoire de la particule

La trajectoire d'une particule dépend de l'ensemble des forces qui s'appliquent sur elle. Dans le cadre d'une étude préliminaire nous nous intéressons à des suspensions diluées de particules sphériques. Lorsque la particule est en suspension dans un fluide en mouvement, en l'absence de gravité et en régime de Stokes, la particule est essentiellement soumise à la force hydrodynamique. Dans un écoulement uniforme et en l'absence de paroi, l'expression de la traînée est donnée par la formule de Stokes :

$$\vec{F}_h = 6\pi\mu r (\vec{U}_f - \vec{U}_p) \quad (2.18)$$

où μ est la viscosité, r le rayon de la particule, U_f la vitesse de l'écoulement et U_p la vitesse de la particule.

Dés que le domaine est limité par une paroi, il convient de modifier la formule par des facteurs correcteurs λ_f et λ_p , qui tiennent compte de la modification de l'écoulement et des effets de paroi (Elimelech et *al.*, 1995). La force hydrodynamique F_h s'écrit alors :

$$\vec{F}_h = 6\pi\mu r (\lambda_f \vec{U}_f - \lambda_p \vec{U}_p) \quad (2.19)$$

De nombreux travaux ont été traités sur l'évaluation de la force hydrodynamique sur une sphère dans diverses configurations d'écoulement. En général les auteurs étudient également les effets de rotation et donnent les valeurs des facteurs correcteurs pour les moments. (Voir figure 2.4).

Brenner (1961) par exemple, a déterminé de façon analytique l'expression du facteur correcteur dans le cas d'une sphère se déplaçant perpendiculairement à un plan infini dans un fluide au repos. Par la suite, Cox et Brenner (1967) ont proposé une expression simplifiée lorsque la sphère est proche d'un plan solide infini dans un fluide au repos. Dans le cas d'une sphère se déplaçant parallèlement à une surface, Faxen (1922) a donné un développement asymptotique du facteur correcteur en fonction de la distance relative de la sphère à la paroi lorsque la sphère est assez loin du plan. Dans le même esprit, Faxen et Dahl (1925) ont étudié le déplacement d'une sphère parallèlement à une surface plane non contrainte.

Dans le cas où la sphère s'approche d'une paroi avec un orifice, Dagan et *al.* (1982) ont étudié la traînée s'exerçant sur cette sphère lorsqu'elle se déplace dans l'axe d'un orifice circulaire de longueur finie. Par la suite, Yan et *al.* (1987) ont généralisé les travaux de Dagan et *al.* au

problème tridimensionnel. Ils ont donné les facteurs de correcteurs pour une sphère se déplaçant dans n'importe quelle direction, dans un fluide au repos, au-dessus d'un écran mince comportant un trou circulaire. Finalement, Michalopoulo et *al.* (1992) se sont intéressés à une sphère s'approchant d'un obstacle perméable. En utilisant une méthode de séparation des variables et des coordonnées adaptées à leur géométrie, ils ont déterminé le facteur correcteur à la force de Stokes s'appliquant sur la sphère.

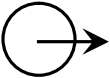
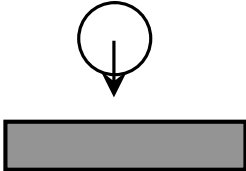
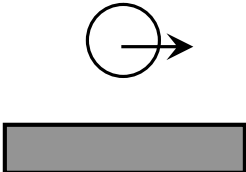
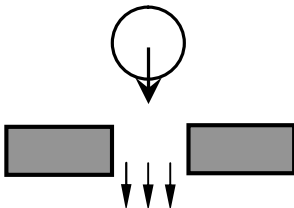
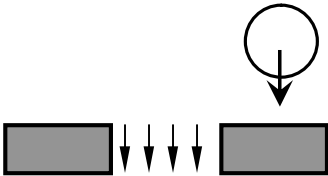
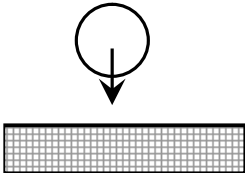
Cas étudié	Auteurs
	Stokes
	Brenner (1961) Cox et Brenner (1967)
	Faxen (1922) Faxen et Dahl (1925) Hamberman et Sayre (1958) Goldman et al (1967) O'Neill (1968)
	Dagan et al (1982)
	Yan et al (1987)
	Michalopoulo (1992)

Figure 2.4 cas hydrodynamiques présentés avec leurs auteurs

Afin d'étudier l'influence de la rotation, de nombreux auteurs (Goldman *et al.*, 1967 ; Yan *et al.*, 1987) ont montré que l'effet de la rotation de la particule sur son mouvement de translation était négligeable excepté dans une zone très proche de la paroi. En se basant sur les travaux de Goldman et ceux de Yan, Frey (1998) a comparé l'influence de la rotation et de la translation sur la force hydrodynamique appliquée à une sphère s'approchant de la paroi. Il a constaté que la force due à la rotation est faible dans cette phase du mouvement.

Dans le cadre de l'étude des phénomènes de capture de particules par une paroi poreuse, Frey *et al.* (2000), ont étudié les interactions hydrodynamiques lorsqu'une particule en suspension diluée s'approche d'une paroi afin de caractériser le dépôt de la première couche de particules sur cette paroi. En se basant sur une approche simplifiée, ayant le même type de conditions limites que celles utilisées par Brenner (1961), les auteurs ont déterminés les différents facteurs correcteurs à la force de Stokes qui interviennent dans cette configuration d'écoulement. Ils ont décrit, dans un premier temps, les cas asymptotiques associés au problème considéré, puis ils ont proposé des raccordements entre ces cas asymptotiques pour obtenir la valeur des facteurs correcteurs en tout point du domaine géométrique considéré.

Les corrélations obtenues ont été validées à l'aide d'un code aux éléments de frontière développé pour ce travail, qui résout les équations de Stokes dans un domaine tridimensionnel quelconque.

A notre connaissance, aucune étude n'a pris en compte des facteurs correcteurs portés aux interactions hydrodynamiques lorsqu'une particule en suspension diluée s'approche d'une autre particule au cours de la formation de la première couche de particules sur une paroi filtrante.

Par ailleurs, l'hydrodynamique n'est pas le seul phénomène physique en présence à proximité de la paroi filtrante. Il est donc nécessaire d'établir le bilan des différentes forces qui peuvent s'appliquer sur une particule en suspension dans cette région. Considérons notre cas particulier. Les particules sont supposées sphériques, de taille micronique, de même densité que le fluide porteur. L'écoulement est rampant sur une paroi poreuse aspirante. Les phénomènes prépondérants qui interviennent à l'échelle de la particule sont :

- l'hydrodynamique,
- la force de Van der Waals,
- la force de double couche.

Dans cette première approche, nous effectuons le calcul de trajectoires de particules soumises à une force d'entraînement (hydrodynamique), une force attractive (Van der Waals) et une

force répulsive (double couche). En raison de leur taille, les particules, qui sont de même densité que le fluide, suivent les lignes de courant jusqu'à ce que les interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées entrent en jeu. En effet, puisque la force hydrodynamique est prise en compte par l'intermédiaire de la seule force de traînée visqueuse, il vient en négligeant l'inertie :

$$\vec{F}_h = \vec{0} \text{ soit } \vec{U}_f = \vec{U}_p \quad (2.20)$$

2.4.1 Modèle

A partir du champ hydrodynamique, déterminé dans un domaine bidimensionnel correspondant au voisinage d'un pore de la membrane, nous proposons d'analyser les trajectoires de particules en suspension soumises à une force attractive et une force répulsive. L'équation (2.19) montre un lien direct entre le mouvement des particules et l'écoulement. Le mouvement des particules dépend de la force de traînée exercée par l'écoulement. L'écoulement dépend de la position de particules puisque le domaine liquide change dans la mesure où des particules se sont déplacées. Le mouvement des différentes particules dépend de la position des parois (membrane et d'autres particules) par l'intermédiaire des facteurs correcteurs et par les forces de surfaces où les expressions potentielles sont données dans les équations (2.24-2.27). Par conséquent il est tout à fait difficile de résoudre ce problème complexe sans quelques simplifications.

Nous supposons alors, que les particules sont en faible concentration dans le fluide de telle sorte qu'elles arrivent individuellement dans la région de paroi. Une particule n'est donc pas influencée par les autres particules en suspension. Elles sont choisies suffisamment petites, en l'occurrence de taille micronique, afin d'admettre que le champ hydrodynamique n'est pas perturbé par leurs déplacements. Donc, l'écoulement est calculé à chaque fois qu'une particule introduite dans le domaine s'arrête sur la paroi et/ou sur une particule déjà déposée.

Dans cette étude, les interactions hydrodynamiques sont négligées de telle sorte que la force de traînée se réduit à la force de Stokes (facteurs correcteurs λ_r et λ_p égaux à 1).

Après avoir identifié l'ensemble des forces qui peuvent s'appliquer sur une particule isolée à proximité de la paroi (paragraphe précédent), nous considérons, dans cette approche, l'effet conjugué des forces de Stokes (\vec{F}_h), de Van der Waals et de double couche ; de nature physico-chimique (\vec{F}_{ph}) (voir figure 2.5).

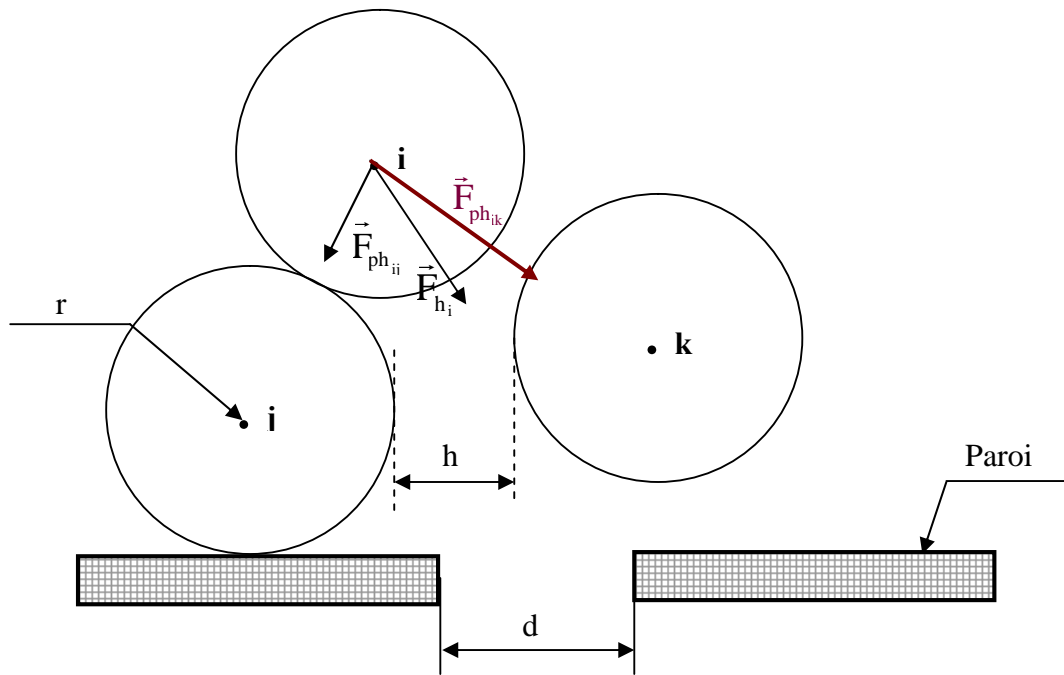


Figure 2.5 Bilan des forces exercées sur une particule i à proximité de la paroi

- **Force de Stokes**

La force de Stokes \vec{F}_h caractérise la force de trainée visqueuse à laquelle est soumise une particule sphérique de rayon r qui se déplace à une vitesse uniforme \vec{U}_p dans un fluide au repos. Son expression est la suivante :

$$\vec{F}_h = 6\pi\mu r \vec{U}_p \quad (2.21)$$

Munis de la distribution de vitesse \vec{U}_f du fluide en tout point du domaine étudié, nous pouvons calculer la force de Stokes en tout point, à partir de la connaissance de la vitesse de la particule. On obtient la relation qui suit :

$$\vec{F}_h = 6\pi\mu r (\vec{U}_p - \vec{U}_f) \quad (2.22)$$

- **Force physico-chimique**

La théorie classique de DLVO suppose que l'attraction de Van der Waals et la répulsion de la double couche peuvent être ajoutées et combinées pour donner le potentiel d'interaction total entre les surfaces en fonction de la distance de séparation h (voir chapitre I) :

$$V = V_{\text{vdw}} + V_{\text{dl}} \quad (2.23)$$

Un grand nombre d'expressions a été proposé dans la littérature pour ces deux potentiels (Israelachvili, 1985 ; Elimelech et *al.*, 1995). Les expressions utilisées dans ce chapitre ont été données par Gregory (1975, 1981).

Pour l'interaction sphère - plan :

$$V_{\text{vdw}} = -\frac{A r}{6h} \quad (2.24)$$

$$V_{\text{dl}} = \frac{128\pi n_{\infty} kT}{\kappa^2} \gamma_1 \gamma_2 \exp(-\kappa h) \quad (2.25)$$

Pour l'interaction sphère - sphère :

$$V_{\text{vdw}} = -\frac{A r}{12h} \quad (2.26)$$

$$V_{\text{dl}} = \frac{64\pi n_{\infty} kT}{\kappa^2} \gamma_1 \gamma_2 \exp(-\kappa h) \quad (2.27)$$

avec

$$\gamma = \tanh\left(\frac{ze\zeta}{4kT}\right) \quad (2.28)$$

$$\kappa = \sqrt{\left(\frac{e^2 \sum n_{i0} z_i^2}{\epsilon kT}\right)} \quad (2.29)$$

Où

A est une constante dite de Hamaker. Elle a les dimensions d'une énergie et son ordre de grandeur est $10^{-19} - 10^{-20}$ J pour la plupart des matériaux,

$$n_{\infty} = 1000 N_A C_S$$

$$N_A = \text{nombre d'Avogadro} = 6,022 \times 10^{23}$$

$$C_S = \text{concentration moléculaire pour un sel (mole / litre)}$$

$$K = \text{constante de Boltzman} = 1,3806503 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$$

$$T = \text{température absolue (Kelvin)}$$

$$\kappa = \text{longueur réciproque de Debye}$$

γ_i = potentiel de surface

En raison du grand nombre de paramètres qui apparaissent dans les expressions du potentiel de double couche dans les équations (2.25) (2.27), une expression simplifiée avec deux paramètres est employée pour les simulations. L'expression utilisée présente la même forme mathématique que celle du potentiel de double couche entre deux surfaces, elle s'écrit :

$$V_{dl} = B \exp(-\kappa h) \quad (2.30)$$

où B est une énergie et κ la longueur réciproque de Debye.

Finalement, les forces d'interaction entre les solides peuvent être obtenues à partir de la dérivation de l'énergie d'interaction par rapport à la distance de séparation h. Cette approche permet donc d'écrire les forces de Van der Waals et de double couche comme :

Pour l'interaction sphère - plan :

$$F_{vdw} = \frac{A r}{6 h^2} \quad (2.31)$$

Pour l'interaction sphère - sphère :

$$F_{vdw} = \frac{A r}{12 h^2} \quad (2.32)$$

Pour les deux cas d'interaction sphère – sphère et sphère - plan :

$$F_{dl} = -\kappa B \exp(-\kappa h) \quad (2.33)$$

Il faut par ailleurs signaler que pour les particules en contact ($h=0$), la force de Van der Waals diverge. Cependant, on peut supposer que la distance de séparation reste limitée puisqu'elle est bornée par la rugosité de l'ordre moléculaire des particules.

2.4.2 Equations à résoudre

Le calcul des trajectoires de particules s'obtient à partir de la relation fondamentale de la dynamique :

$$m_p \frac{d\vec{U}_p}{dt} = \sum \vec{F} \quad (2.34)$$

Où m_p est la masse de la particule, U_p sa vitesse et F l'ensemble des forces qui s'applique à la particule.

Dans le cadre de notre étude nous faisons les approximations suivantes :

1. On suppose que les particules sont sphériques,
2. lors de son déplacement, la particule est soumise aux forces physico-chimiques telles que la force de Van Der Waals et la force de double couche,
3. la suspension est faiblement concentrée d'une part, et les particules sont suffisamment petites d'autre part, afin de négliger la perturbation de l'écoulement due à la présence de particules. Nous pouvons ainsi admettre que le champ hydrodynamique, déterminé en l'absence de particules, est représentatif de l'écoulement de cette suspension au voisinage de la paroi filtrante.

Dans l'acceptation de l'absence de la force d'inertie qui est considéré appropriée au problème, la deuxième loi de Newton pour une particule "i" peut être écrite comme suit :

$$\vec{F}_h^i + \sum_{j=1}^{N_p} [\vec{F}_{vdw}^{ij} + \vec{F}_{dl}^{ij}] = 0 \quad (2.35)$$

où N_p est le nombre de particules suffisamment proches de la particule "i" pour que les interactions physico-chimiques entre surfaces se fassent sentir.

L'équation de la trajectoire est:

$$\frac{d\vec{x}_p}{dt} = \vec{U}_p \quad (2.36)$$

Dans le quel \vec{U}_p est déterminé à partir de l'équation (2.35).

Si on choisit U_{HS} , vitesse de Hele- Shaw, comme échelle de vitesse et L_x comme échelle de longueur, on peut écrire toutes les grandeurs sous forme adimensionnelle :

$$U'_p = \frac{U_p}{U_{HS}}; U'_f = \frac{U_f}{U_{HS}}; x' = \frac{x}{L_x}; t' = \frac{t \cdot U_{HS}}{L_x} \quad (2.37)$$

L'équation à résoudre est la suivante (voir annexe. B) :

$$\vec{U}'_p = \vec{U}'_f + R_e \frac{1}{r'} \sum_i \frac{\vec{F}'_i}{6 \pi r'} \quad (2.38)$$

Avec

$$\frac{1}{r'} \cdot \vec{F}'_i = \left[-\frac{A' \cdot r'}{12 \cdot h_{ji}^2} + B' \cdot \kappa' \exp(-\kappa' h_{ji}') \right] \bar{x}_{ji} \quad (2.39)$$

où

$$A' = \frac{A}{\rho U_{HS}^2 L_x^2 r}, \quad B' = \frac{B}{\rho U_{HS}^2 L_x \cdot r^2}, \quad \kappa' = \kappa \cdot L_x \quad \text{et} \quad F' = \frac{F}{\rho U_{HS}^2 L_x^2}$$

Nous obtenons successivement les trajectoires suivies par une particule dans la région d'étude considérée à partir de sa position initiale en résolvant numériquement ce système d'équations différentielles du premier ordre.

2.4.3 Méthode numérique

En représentation Lagrangienne, la résolution de l'équation de transport (2.35) revient à résoudre un système à deux équations :

$$\begin{cases} x'_p(t' + \Delta t') = U'_p(t' + \Delta t') \Delta t' + x'_p(t') \\ \frac{d\vec{x}'_p(t')}{dt'} = \vec{U}'_p(t') \end{cases} \quad (2.40)$$

Pour suivre les particules et obtenir précisément la position des particules, l'équation de trajectoire du système d'équations précédent a été résolue à l'aide d'un schéma en temps de Runge-Kutta d'ordre 4 avec un pas de temps dépendant de la taille de particules, afin d'obtenir la meilleure précision. En pratique, le pas de temps est choisi égal :

$$\Delta t' = \frac{\Delta x'_{\max}}{|U'_p|} \quad (2.41)$$

Avec $\Delta x'_{\max} = \frac{r'}{10}$

De plus, lorsque la particule est à une distance de la paroi où elle est susceptible d'être capturée, le calcul de la trajectoire est pris avec un pas de temps 2 fois plus petit. Ce raffinement n'est pas dû à un problème de précision de la méthode de Runge-Kutta, mais il permet de mieux prendre en compte au moment de la capture l'effet des forces physico-chimiques qui varie fortement en fonction de la distance de séparation.

La trajectoire est déterminée donc pas à pas. En effet, le principe consiste à fixer les coordonnées et la vitesse initiale de la particule et à calculer pas à pas ses coordonnées et sa vitesse successivement à partir de ces conditions initiales, jusqu'au contact avec la paroi, sinon jusqu'à la collision avec une autre particule déjà déposée, ou jusqu'à la sortie du domaine de calcul si la trajectoire conduit la particule à traverser le pore.

Pour le suivi lagrangien des particules, il faut alors connaître la vitesse en tout point d'espace. Or, on ne connaît pas la vitesse d'écoulement en des points qui ne sont pas sur le maillage numérique. Des schémas numériques précis pour cette interpolation spatiale sont alors nécessaires (figure 2.6).

$$y = y^1 \xi_1 \xi_2 + y^2 (1 - \xi_1) \xi_2 + y^3 \xi_1 (1 - \xi_2) + y^4 (1 - \xi_2) (1 - \xi_1)$$

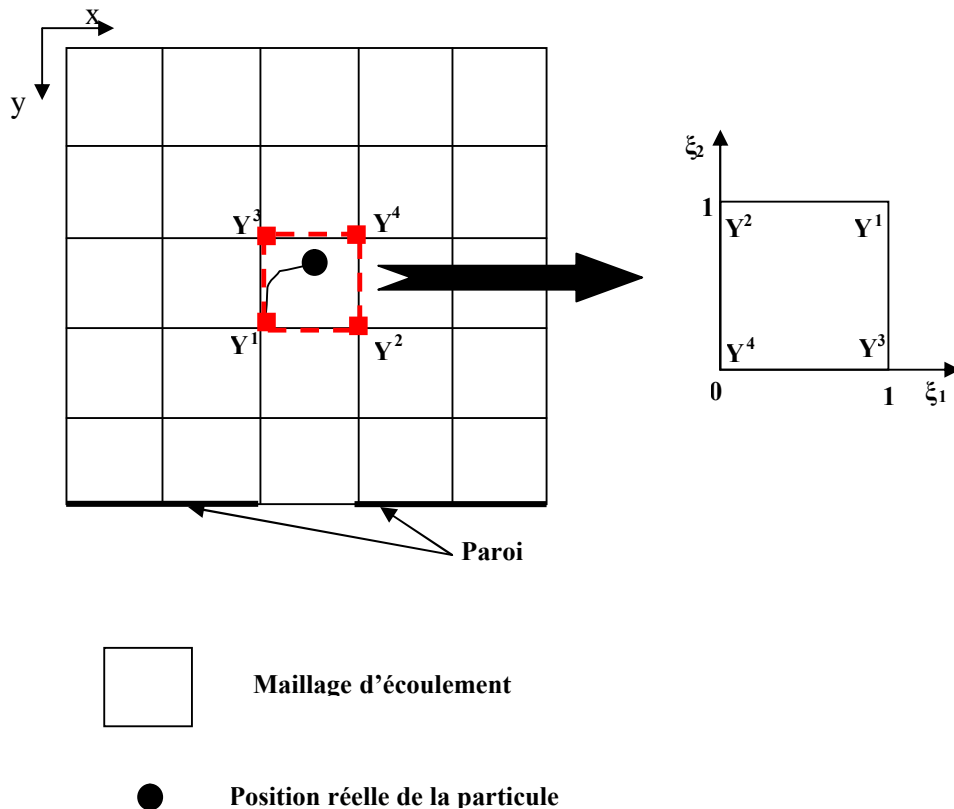


Figure 2.6 trajet d'une particule et Interpolation bilinéaire pour le calcul de la position.

2.5 Algorithme de formation de la couche de particules

On commence par calculer l'écoulement de type Darcy avec comme champ de perméabilité la perméabilité de Hele-Shaw (aucune particule n'est présente dans le domaine de calcul).

$$\begin{cases} \vec{U}'_f = -K'(x', y') R_e \vec{\nabla} P' \\ \vec{\nabla} \cdot [K'(x', y') \vec{\nabla} P'] = 0 \end{cases} \quad (2.42)$$

$$\vec{\nabla} \cdot [K'(x', y') \vec{\nabla} P'] = 0 \quad (2.43)$$

Avec les conditions aux limites présentées précédemment. Ce système est résolu par la méthode des volumes finis (annexe.C).

On tire aléatoirement la position d'une première particule en $y'=0$. La suite aléatoire est générée par la fonction `rand ()` de la librairie standard du langage C++ (Stroustrup., 2000). Lorsque la particule arrive à proximité de la paroi elle peut être capturée par la paroi (par interception directe) ou passer par le pore (figure 2.7).

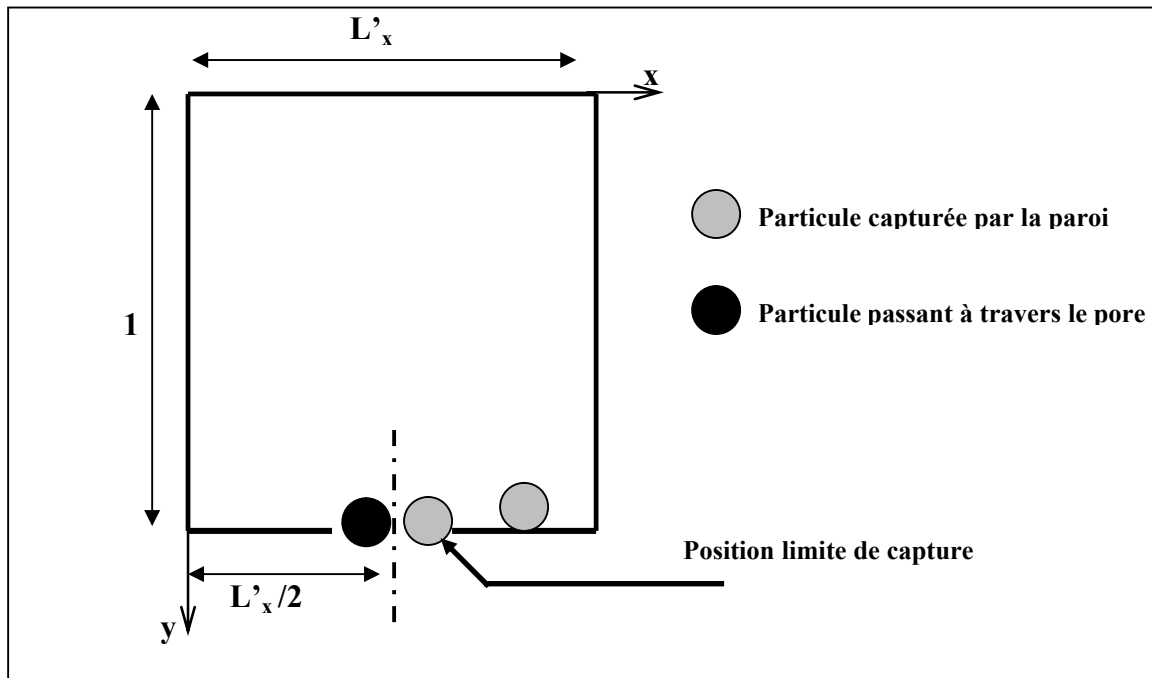


Figure 2.7 Positions de capture d'une particule sur la paroi

La particule est capturée par la paroi si

$$\left| x'_p - \frac{1}{2} \right| \geq \frac{d'}{2} - r'$$

et

$$y'_p \geq 1 - r'$$

(2.44)

Lorsque la particule est capturée, on modifie le champ de perméabilité. Le maillage permettant de calculer le champ de perméabilité (que l'on désigne par la suite comme maillage **K**) est différent du maillage permettant de calculer l'écoulement (que l'on désigne par la suite comme maillage **F**). En effet, la taille des mailles du maillage **F** est prise plus petite que la

taille des mailles du maillage **K**, dans le but d'avoir une meilleure précision au niveau du déplacement de la particule et de sa position. La taille des mailles du maillage **K** est égale au diamètre des particules : figure 2.8. La porosité est calculée à chaque maille **K** comme étant le rapport entre le volume non occupé par les particules et le volume totale de la cellule du maillage **K** (figure 2.8). La perméabilité est calculée à partir d'une formule dérivée de la relation de Tsay et Weinbaum (1991) bien adaptée à une cellule **K** occupée par une particule et à l'aide de la relation de la cellule de Hele – Shaw dans le cas contraire.

On considère que toutes les cellules du maillage **F** qui sont contenues dans une même cellule de maille **K** ont toutes la même perméabilité, c'est-à-dire que la perméabilité est considérée comme constante par maille **K**. Les champs de perméabilité étant déterminés, on peut alors recalculer l'écoulement (équation (2.12)). Une fois l'écoulement recalculé, on tire aléatoirement la position de la nouvelle particule et on teste cette fois-ci si elle est capturée par la paroi ou par la première particule déposée. On considère dans ce modèle que si une particule en mouvement entre en contact avec une particule du dépôt, elle est automatiquement arrêtée (absence de rebond). Ceci correspond à une probabilité de capture égale à 1 (Tarabara., 2000). On répète ainsi le processus jusqu'à ce que le nombre de particules déposées fixé au début de la simulation soit atteint.

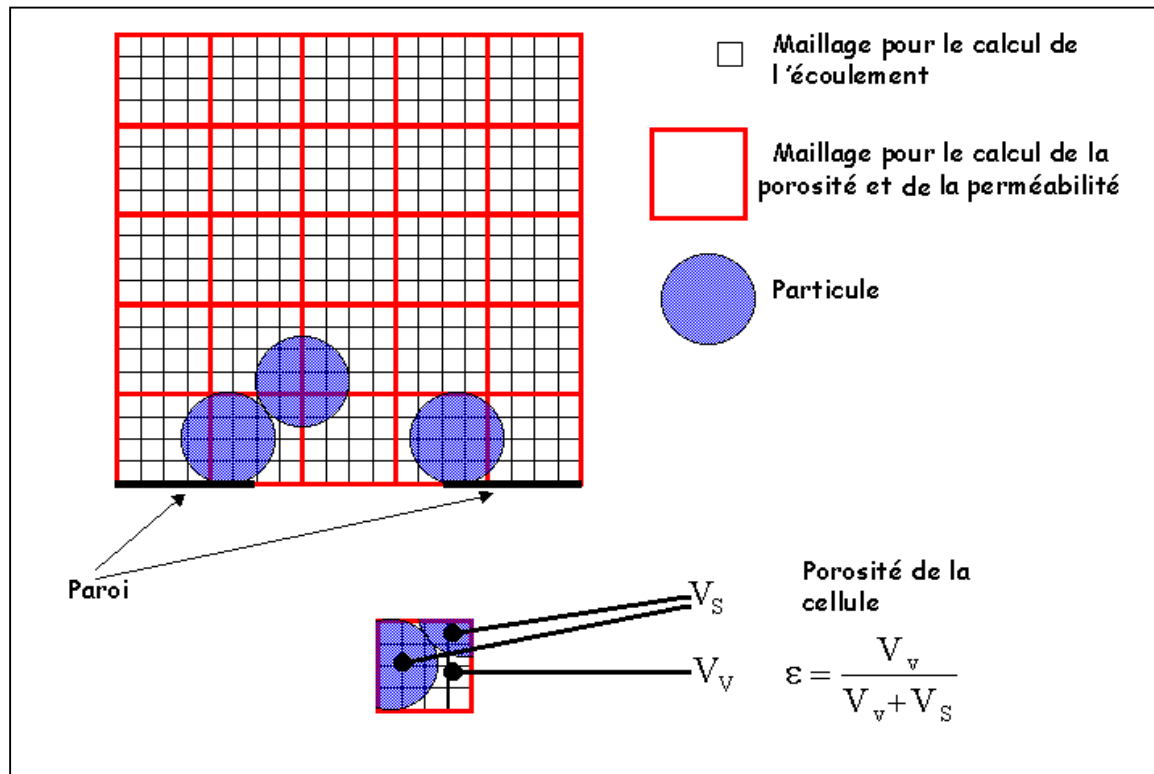


Figure 2.8 Description du calcul de la porosité

Dans la figure 2.9, nous présentons l'algorithme du code de calcul de la formation de couche de particules qui nous permet de calculer le débit à chaque itération du calcul. Le débit est déterminé sur une section transversale du milieu poreux. Il est calculé de la manière suivante :

$$Q = \int_0^1 \int_0^{L_y} U'_f dx' dy' \quad (2.45)$$

L'intégration numérique de cette équation (2.45), consiste à remplacer l'intégrale par une somme discrète sur un nombre fini de points en utilisant la méthode des trapèzes. On aura:

$$Q_L = \sum_{i=1}^{n-1} \frac{\Delta x}{2} (U'_{fx}(i, j) + U'_{fx}(i+1, j)) \frac{\Delta y}{2} \quad (2.46)$$

avec n : nombre de cellules du maillage F

Δx : Pas de cellules du maillage F

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons caractérisé la surface filtrante utilisée et le régime de l'écoulement. Dans notre travail, nous utilisons une surface filtrante modèle constituée de pores circulaires régulièrement répartis suivant un arrangement carré. Pour simplifier, l'étude est réalisée sur un domaine constitué d'un élément unitaire représentatif de cette surface, muni de conditions aux limites périodiques. De plus, dans une première approche quasi bidimensionnelle, le domaine est restreint à une cellule Hele-Shaw dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule, de telle sorte que le modèle de Darcy s'applique sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale aléatoirement choisie et décrivent des trajectoires qui tiennent compte de la structure de l'écoulement et des interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées. L'écoulement de Darcy dans le domaine complet est recalculé une fois la particule déposée, sur un champ de perméabilité variable comprenant une région fluide de type Hele-Shaw et une région poreuse correspondant au dépôt.

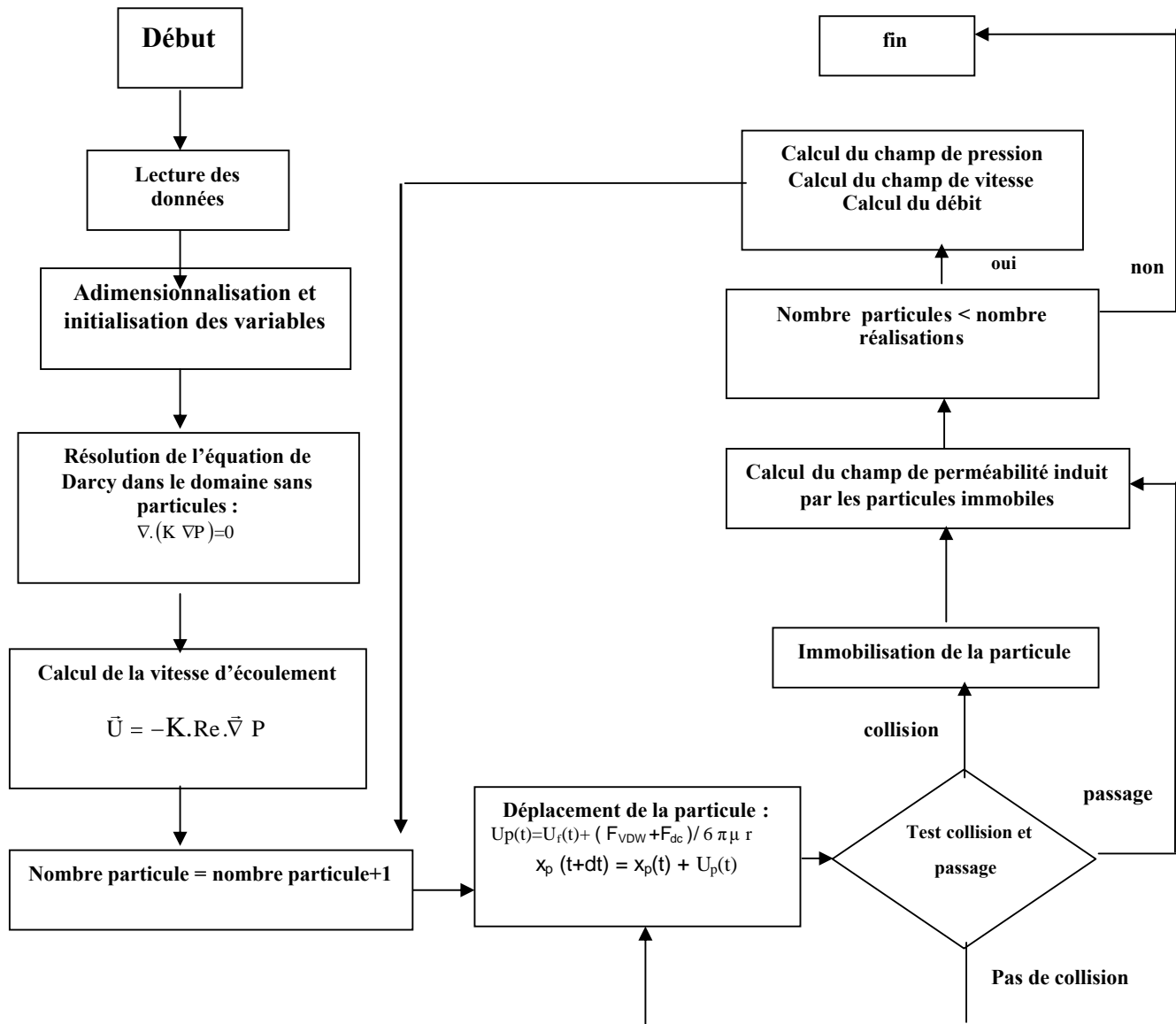


Figure 2.9 Organigramme du code de calculs

Bibliographie

Belfort G., Davis R.H., Zydney A.L., *The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration*, J. Memb. Sci, 96, 1-58, 1994.

Berman A.S., *Laminar flow in channels with porous walls*, J. of Appl. Phys, 24, 1232, 1953.

Brenner H., *The slow motion of a sphere through a viscous fluid towards a plane surface*, Chem. Eng. Sci, 16, 242, 1961.

Chatterjee S.G., Belfort G., *Fluid flow in an idealized spiral wound membrane module*, J. Memb. Sci, 28, 191-208, 1986.

Cox R.G., Brenner H., *The slow motion of a sphere through viscous fluid towards a plane surface*, Chem. Eng. Sci, 22, 1753-1777, 1967.

Dance S.L., Maxey M.R., *Incorporation of lubrication effects into the force coupling method for particulate two-phase flow*, Journal of computational physics, 184, 381-405, 2003.

Dufrêche J., *Ecoulement à travers une couche poreuse limitée par une paroi perforée: Comparaison entre approche de Darcy et simulations numériques à l'échelle microscopique*, Thèse de doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 2000.

Elimelech M., Gregory J., Jia X., Williams R., *Particle deposition and aggregation*, Butterworth Heinemann Ltd, 1995

Faxen H., Dahl H., *Mutual action of two spheres falling in a viscous liquid*, Arkiv. Mat. Astron. Fys, 19A, 13, 1925.

Faxen H., *The resistance to the motion of a solid sphere in a viscous liquid enclosed between parallel walls*, Ann. Physik, 68, 89, 1922.

Frey J.M., *Interactions hydrodynamiques entre particule et paroi en écoulement de Stokes : Application à la filtration*, Thèse de Doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 1998.

Frey J.M., Schmitz P., *Particle transport and capture at the membrane surface in cross flow microfiltration*, Chem. Eng. Sc, 55, 4053-4065, 2000.

Frey J.M., Prat M., Schmitz P., *Sur l'écoulement à proximité d'une paroi poreuse avec aspiration*, Compte Rendue de l'Académie des Sciences Série II b.t, 327, 241-244, 1999a.

Goldman A., Cox R., Brenner H., *Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall-i. Motion through a quiescent fluid*, Chem. Eng. Sci, 22, 637-651, 1967.

Goldman A., Cox R., Brenner H., *Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall-ii. Motion through a quiescent fluid*, Chem. Eng. Sci, 22, 637-651, 1967.

Gregory J., *Interaction of unequal double layers at constant charge*, J. Colloid Interface Sci, 51, 44-51, 1975

Gregory J., *Approximate expressions for retarded Van der Waals interaction*, J. Colloid Interface Sci, 83, 138-145, 1981

Haberman W., Sayre R.M., *Motion of rigid and fluid spheres in stationary and moving liquids inside cylindrical tubes*. Technical Report 1143, US Navy Department, Washinton D.C, 1958.

Israelachvili J., *Intermolecular and surface forces*, Academic Press, 1985.

Lomholt S., Maxey M.R., *Force coupling method for two phase flow: Stokes Flow*, Journal of computational physics, 189, 212-238, 2003.

Maxey M.R., Patel B.K., *Localizes force representation for particles sedimenting in Stokes flow*, International Journal of Multiphase Flow, 27, 1603-1626, 2001.

Michalopoulos A.C., Burganos V.N., Payatakes A.C., *Creeping axisymmetric flow around a solid particle near a permeable obstacle*, A.I.Ch.E, 38, 1213, 1992.

Nasseri S., Phan-Tien N., Fan X.J., *Lubrication approximation in complete double layer boundary element method*, Computational Mechanics, 26, 388-397, 2000.

Noël F., *Simulation directe de la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse, application à la filtration d'arrêt*, Thèse de Doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 2006.

O'Neill M.E., *A sphere in contact with a plane wall in a slow linear shear flow*, Chem. Eng. Scie, 23, 1293-1298, 1968.

Pozrikidis C., *A Practical Guide to Boundary-Element Methods with the software library*, Chapman et Hall// CRC Press, ISBN 1-58-488323-5, 2002.

Pozrikidis C., *Boundary and singularity methods for linearized viscous flow*, Cambridge University Press, ISBN 0521406935 (paperback), 0521405025 (hardcover).

Schmitz P., Prat M., *3-d laminar stationary flow over a porous surface with suction: description at pore level*, A.I.Ch.E, 41, 2212, 1995.

Stroustrup B., *The C++ Programming Language*, Special edition. Addison Wesley Publishing Company, ISBN 0-201-70073-5. 2000.

Tarabara V., Pierrisnard F., Parron C., Bottero J.Y., Wiesner M.R. *Morphology of deposits formed from chemically heterogeneous suspensions: application to membrane filtration*. Journal of Colloidal and interface Science, 256, 367-377, 2002.

Tsay R., Weinbaum S., *Viscous flow in a channel with periodic cross-bridging fibers: exact solutions and Brinkman approximation*, Journal of Fluid Mechanics, 226, 125-148, 1991.

Wang C.Y., *Stokes flow through a thin screen with patterned holes*, A.I.Ch.E, 40, 419, 1994.

Weinbaum S., Ganatos. P., Zong Yi, Y., *Numerical multipole an boundary integral techniques in Stokes Flow*. Annual Review of Fluid Mechanics, 22, 275-316, 1990.

Yan Z.Y., Weinbaum S., Ganatos P., Pfeffer R., *The three dimensional hydrodynamic interaction of a finite sphere with a circular orifice at low reynolds number*, J. Fluid. Mech, 174, 39, 1987.

Zick A.A., Homsy G.M., *Stokes flow through a periodic array of spheres*, Journal of Fluid Mechanics, 115, 13-26, 1982.

Chapitre 3. DENSITE DE PROBABILITE DE CAPTURE DE LA PREMIERE PARTICULE DEPOSEE

3.1 Introduction

Afin d'analyser l'étape initiale de la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse au cours d'une microfiltration, une étude théorique a été menée pour déterminer la position de la première particule déposée à proximité d'un pore d'une surface poreuse filtrante. Le domaine d'étude est l'élément unitaire d'une surface poreuse modèle spatialement périodique, présentant un arrangement régulier de pores.

Depuis plusieurs dizaines d'années, des travaux théoriques ont été consacrés à l'étude des trajectoires de particules au voisinage d'un pore généralement en négligeant les interactions hydrodynamiques particule-paroi et en ne considérant que l'effet de l'inertie de la particule sur sa trajectoire. La prise en compte des forces attractives d'origine moléculaires a été faite par l'introduction d'une distance de capture ε . Lorsqu'une particule se trouve à une distance inférieure à la distance de capture de la paroi, elle est définitivement capturée par cette dernière. Ces études prévoient généralement qu'une particule n'entrera pas dans le pore quand sa trajectoire est entre certaines trajectoires critiques le long desquelles la particule frôlera tangentiellement le bord du pore et les lignes de courants (figure 3.1). Cette trajectoire critique est employée également pour calculer l'efficacité de capture qui détermine le pourcentage de particules injectées qui sont capturées par le pore. Elle est définie par la coïncidence des vecteurs \vec{n}_1 et \vec{n}_2 au point de la tangente de l'arc circulaire de rayon $a + \varepsilon$ avec le bord du pore et la trajectoire de la particule.

\vec{n}_1 représente le vecteur normal à l'arc circulaire de rayon $a + \varepsilon$ et \vec{n}_2 la normale à la trajectoire de la particule.

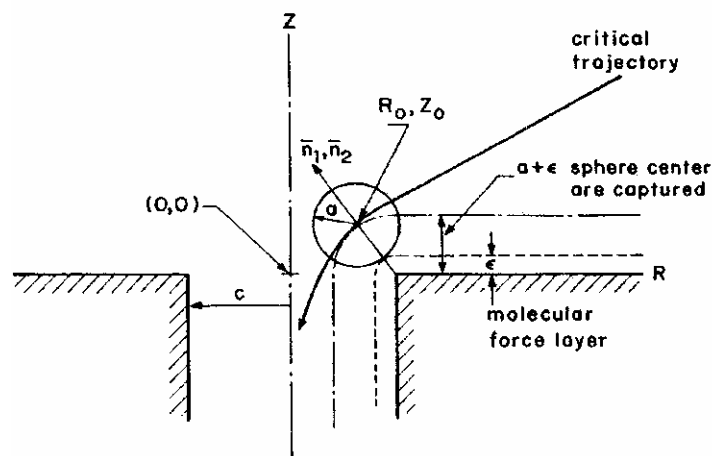


Figure 3.1 trajectoire critique

Dagan *et al.* (1983) ont montré théoriquement et expérimentalement que l'efficacité de capture doit tendre vers zéro quand les forces moléculaires sont négligeables si on tient compte des interactions hydrodynamiques. Ils ont étudié le problème tridimensionnel de la trajectoire d'une particule sphérique arbitraire à l'entrée d'un pore circulaire d'une paroi infiniment mince (hypothèse d'écran mince) à faible nombre de Reynolds. Les solutions obtenues à partir des approximations effectuées, ont montré l'effet des interactions hydrodynamiques sur la trajectoire de la particule et ont démontré que, pour un nombre de Stokes égal à zéro et quand les effets d'inertie sont négligeables, l'interaction particule-mur fait dévier sensiblement la trajectoire de particules à celle des lignes de courant lorsque la particule s'approche du pore du fait de la répulsion visqueuse.

En tenant compte des interactions hydrodynamiques d'une particule se déplaçant vers un pore isolé d'une paroi infiniment mince d'extension infinie, Wang *et al.* (1986) ont montré comment l'efficacité de capture change en fonction de la force d'inertie (nombre de Stokes) et des forces moléculaires. En effet, ils ont établi des expressions approchées décrivant la variation spatiale de la résistance non-isotrope de la particule pendant qu'elle s'approche du pore, et ils ont développé un modèle simple d'interaction pour décrire la capture en présence des forces moléculaires. Cette théorie fournit une explication raisonnable de la capture des particules par la paroi quand la couche visqueuse de liquide entre la particule et la paroi est considérée.

En combinant l'effet d'inertie des particules à celles des interactions hydrodynamiques de la particule avec la paroi et l'effet des forces électrostatiques au niveau moléculaire sur l'efficacité de capture du pore, Kao *et al.* (1988) ont proposé un modèle théorique pour le cas d'une particule se déplaçant vers un pore isolé d'une paroi infiniment mince d'extension infinie. Cette étude qui complète l'analyse précédente a examiné l'influence de la porosité de paroi et le rapport entre la taille de la particule et la taille du pore sur l'efficacité de capture d'un pore non isolé. Pour un pore isolé, la valeur asymptotique de cette efficacité pour des larges valeurs du rapport diminue avec l'augmentation du nombre de Stokes.

Ces études montrent l'effet de diverses forces sur la trajectoire des particules en suspension à proximité d'un pore d'une paroi et par suite sur l'efficacité de capture traduisant l'ensemble des particules qui se déposent sur un grain mais, n'offre aucun renseignement quant à leur répartition autour du pore.

Cependant, Frey *et al.* (1999) ont étudié la formation du dépôt de particules en filtration en masse (système qui permet le passage d'une suspension au travers d'un milieu poreux de grande taille) lorsque les effets hydrodynamiques sont dominants. En se plaçant

à l'échelle du pore, les auteurs ont déterminé la trajectoire de particules au travers d'une cellule représentative du milieu poreux modèle constitué d'un ensemble de canaux interconnectés. A partir du calcul de trajectoires, les auteurs ont déterminé la densité de probabilité de capture de particules sur la paroi poreuse, afin de déterminer les lieux les plus probables de dépôts sur la paroi. Deux mécanismes distincts de captures ont été déterminés. Le premier nommé « dépôt d'invasion de pore » est caractérisé par l'accumulation des particules sur le coin des grains de micro-modèle. Le dépôt croît vers l'amont de l'écoulement et tend à envahir le pore. Le deuxième nommé « dépôt d'invasion de canal » est caractérisé par la déposition des particules sur les parois des canaux situés à l'amont du pore. Par la suite, l'obstacle constitué tend à obstruer le canal situé à l'aval du pore.

En filtration tangentielle, Frey et Schmitz (2000) ont traité l'étude des trajectoires de particules au-dessus d'une paroi comportant des pores périodiquement répartis avec la même méthode que précédemment. A partir d'un calcul simplifié de l'écoulement, les forces hydrodynamiques qui agissent sur les particules et les trajectoires de particules associées ont été déterminées. La densité de probabilité de capture des particules sur la paroi poreuse a été calculée en fonction de la porosité, de l'inertie des particules, des effets physico-chimiques et de l'intensité du cisaillement. Les résultats obtenus soutiennent la conclusion que les meilleures conditions opératoires pour avoir une première couche de dépôt de particules uniformément distribuée, pour un rapport de taille particule-orifice donné, sont : une porosité élevée, une grande distance de capture et une intensité de cisaillement importante.

Plus récemment des informations quantitatives sur l'étape initiale de formation du dépôt ont été obtenues par Duru (2007), en observant directement par microscopie la capture des particules de latex mono disperses à la surface de membranes de type microsieves (terminologie anglaise usuelle signifiant "micro-tamis") au cours d'une filtration frontale. Le dispositif a permis de déterminer la densité de probabilité de capture de la première particule au voisinage d'un pore. Les premiers résultats ont montré l'existence de deux positions préférentielles (figure 3.2) dans des conditions expérimentales sans inertie.

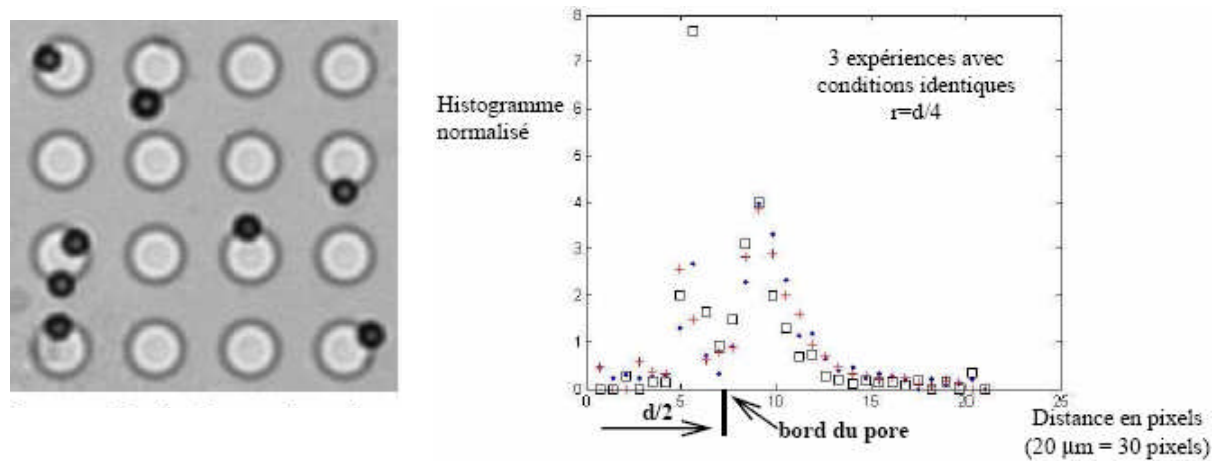


Figure 3.2 Distribution radiale des particules (normalisée) par rapport au centre du pore- expérimental

Dans la figure 3.2 sont présentées les positions de particules exprimées en pixels, au niveau d'une maille élémentaire du réseau de pores, i.e. un carré de 20 microns par 20 microns centré sur le pore. A gauche, un détail d'une microsieve observée sous microscope, en cours d'expérience. On identifie parfaitement quelques particules déposées au voisinage de certains pores. A droite, la distribution des « points d'impacts » des particules, obtenue en considérant l'ensemble des pores et en ne retenant que la position de la première particule se déposant au voisinage de chaque pore.

La répartition du dépôt que constitue la première couche de particules déposées sur la paroi, est alors une problématique qui dépend de plusieurs paramètres d'étude tels que les interactions hydrodynamiques particule-paroi, la porosité de la paroi, la distance de capture,.... En effet comme l'illustre les différentes publications citées précédemment, la modification de l'un de ces paramètres au cours de la microfiltration a un effet important sur la trajectoire de la particule ainsi que par suite, sur sa position par rapport au pore de la paroi et par voie de conséquence sur la densité de probabilité de capture de la première particule déposée.

L'objectif de ce chapitre est de caractériser la position de la première particule déposée sur une paroi poreuse modèle en présence des forces attractives de type Van Der Waals et d'essayer en particulier d'expliquer l'existence de deux positions préférentielles telles que celles obtenues par Duru (2007). Le domaine d'étude est celui de la cellule de Hele Shaw définie dans le chapitre précédent. Deux méthodes différentes sont mises en œuvre :

- statistique à partir du calcul d'un grand nombre de trajectoires issues de positions initiales tirées au hasard,

- déterministe à partir du calcul d'un petit nombre de trajectoires issues de positions initiales réparties uniformément dans la région d'entrée.

3.2 Modèle de la paroi filtrante

Le domaine géométrique d'étude est limité à un élément unitaire représentatif d'une paroi perforée spatialement périodique comportant un arrangement régulier de pores. Il est constitué d'une cellule Hele Shaw rectangulaire de dimensions L_x et L_y et d'épaisseur $2.r$, où r est le rayon d'une particule, comportant une paroi présentant un pore de largeur d (figure 3.4).

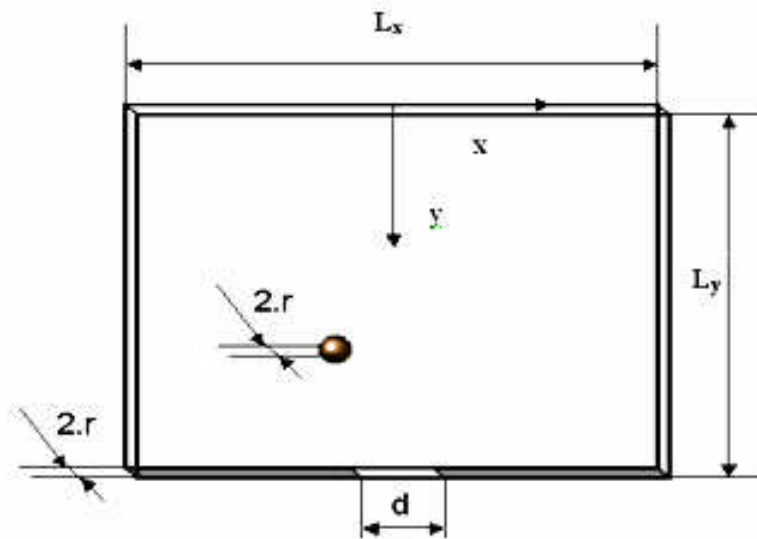


Figure 3.3 Représentation du domaine d'étude

Le fluide s'écoule dans la direction y sous l'action d'une différence de pression $P_1 - P_0$ imposée. P_1 est la pression à l'amont et P_0 est la pression au niveau du pore, elles sont supposées uniformes. L'écoulement est modélisé dans l'ensemble du domaine par l'équation de Darcy muni des conditions limites et périodiques décrites dans le chapitre II.

3.3 Densité de probabilité de capture de la première particule sur la paroi à partir de positions initiales aléatoirement choisies

Dans ce paragraphe nous présentons la position la plus probable de la première particule déposée par rapport au centre du pore d'une membrane modèle spatialement périodique en fonction de la taille de la particule et des forces d'interactions moléculaires. Dans un premier temps, nous considérons le cas d'une taille de pore fixée, ensuite le cas d'une taille de pore variable.

3.3.1 Taille de pore fixée

Les simulations ont été réalisées pour une taille de pore fixée $d'=0.1$ (la porosité de la paroi est de 10%) et quatre tailles de particules $r'=\frac{d'}{4}$, $\frac{d'}{6}$, $\frac{d'}{8}$ et $\frac{d'}{10}$. La longueur des mailles du maillage **K** (maillage de perméabilité) est égale à la taille de la particule. Les dimensions de la cellule Hele - Shaw sont fixées à $L'_x = 1$ et $L'_y = 3$. La procédure consiste à lancer en haut du domaine une particule à partir d'une position initiale aléatoirement choisie. On suit le trajet de la particule jusqu'à sa collision avec la paroi ou son passage à travers le pore. Si la particule est capturée, on note sa position finale. On procède à 5000 tirages (voir annexe. D) aléatoires de la position initiale de la particule en haut du domaine afin de déterminer la probabilité de sa position par rapport au pore d'une paroi filtrante. En raison de la symétrie, l'étude est limitée à la moitié du domaine géométrique de telle sorte que ce dernier soit définie par la partie positive des axes x et y (figure 3.4) et le centre du pore sera considéré comme origine des axes. Ce choix est justifié par le fait que les premières particules se déposent préférentiellement autour du pore. Nous choisissons 100 segments $I_i = [X_i, X_{i+1}]$ équiprobables sur la paroi. Le calcul de chaque trajectoire donne un point d'impact sur la paroi. La densité de probabilité correspond à la probabilité qu'un point d'impact appartient à un segment $I_i = [X_i, X_{i+1}]$.

Quatre cas différents sont définis selon les positions relatives du centre de la particule (point S) et du centre de pore (point O) (figure 3.4).

Ici x' est la distance entre le centre de la particule (point S) et le centre du pore (point O).

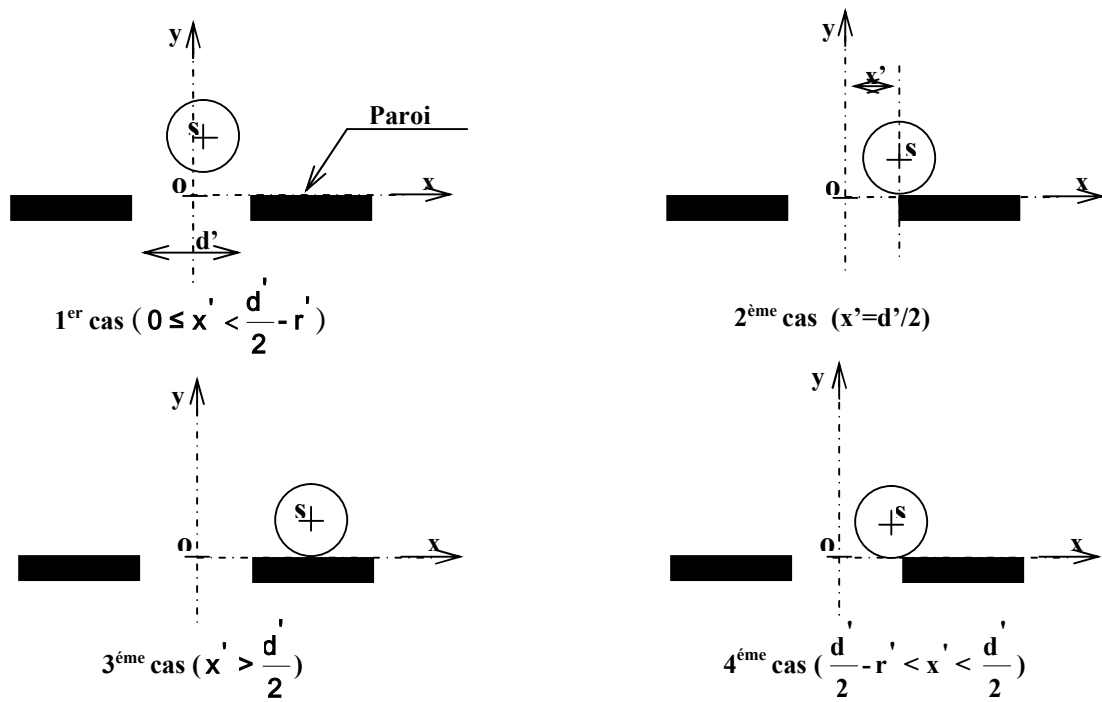


Figure 3.4 Considérations géométriques utilisées pour déterminer la distribution de la première particule déposée par rapport au centre du pore

1^{er} cas (*S est à l'intérieure du pore*). Pour une distance x' entre le centre de la sphère et le centre du pore définie par $0 \leq x' < \frac{d'}{2} - r'$, la particule est à l'intérieur du pore, d'où son passage à travers ce dernier.

2^{ème} cas (*S est exactement sur le bord du pore*). Selon l'algorithme de la formation de la couche de particules (chapitre 2), la particule est capturée par la paroi pour $x' = \frac{d'}{2}$.

3^{ème} cas (*S est en dehors du pore*). Une autre position de capture peut exister au cours du déplacement de la particule à proximité de la paroi définie par $x' > \frac{d'}{2}$. Dans ce cas la capture de la particule est loin du pore.

4^{ème} cas (*le point S est entre $x' = d'/2 - r'$ et $x' = d'/2$*). Pour cette géométrie, qui est entre les cas 1 et 2, la particule peut être partiellement à l'intérieur de l'ouverture de pore comme il est indiqué dans la figure 3.5.

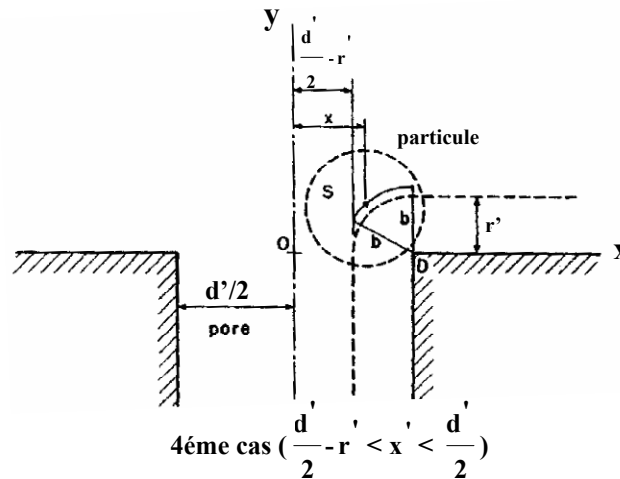


Figure 3.5 Considérations géométriques utilisées pour déterminer la distribution de la première particule déposée par rapport au centre du pore donné dans la région $\frac{d'}{2} - r' < x < \frac{d'}{2}$

Pour déterminer la probabilité de capture d'une première particule déposée sur la paroi, un histogramme de la distribution des particules par rapport au centre du pore est représenté (figure 3.7). Cette étude consiste à déterminer le pourcentage du nombre de particules déposées en fonction de la grandeur x .

Deux cas sont étudiés :

- 1- présence des interactions attractives de type Van der Waals entre particule et paroi définies par:

$$F_{vdw} = \frac{A r}{6 h^2} \quad (3.1)$$

- 2- absence des interactions physico-chimiques particule - paroi.

L'absence de l'étude de cette probabilité de capture en présence des interactions répulsives de type double couche entre particule et paroi, est due à l'effet attractif important exercée par la paroi. En effet, en supposant que les interactions répulsives entre la paroi et la particule sont prédominantes et en se basant sur la courbe du potentiel d'interaction total ($V't$) (figure 3.6), nous avons constaté que dès que la particule s'approche de la paroi par diminution de la distance de séparation entre particule/paroi, elle sera capturée sous l'effet du potentiel d'attraction de Van der Waals.

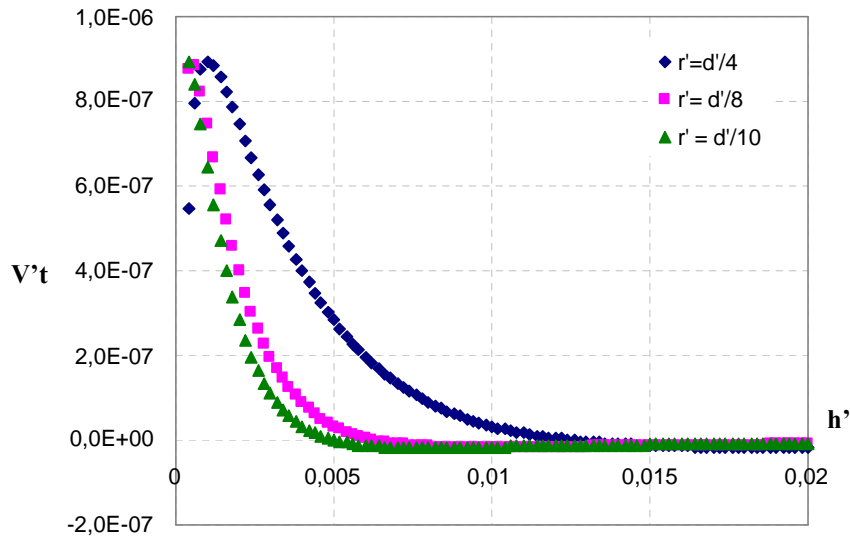


Figure 3.5 Evolution des potentiels d'interaction en fonction de la taille de la particule.

Cette explication est vraie pour une grande taille de particule mais, ne l'est pas pour une petite taille de particule (figure 3.6). Pour cette raison une étude de la densité de probabilité de capture d'une particule par rapport au pore donné a été déterminée en appliquant une interaction répulsive de type double couche entre particule et paroi (figure 3.7). Cette étude a été effectuée pour deux tailles de particules : $r' = d'/4$ et $r' = d'/6$. Selon la figure 3.7, nous constatons qu'en présence d'une interaction répulsive paroi-particule prédominante, la densité de probabilité de capture pour une grande taille de particule, possède un maximum au voisinage du pore. Pour une taille de particule faible, la particule occupe plusieurs points d'impacts sur la paroi. Ceci est dû à l'effet répulsif exercé par la paroi qui repousse la particule en s'approchant de la surface de contact et qui dans le cas de particules de petite taille est difficilement contrecarré par le force hydrodynamique.

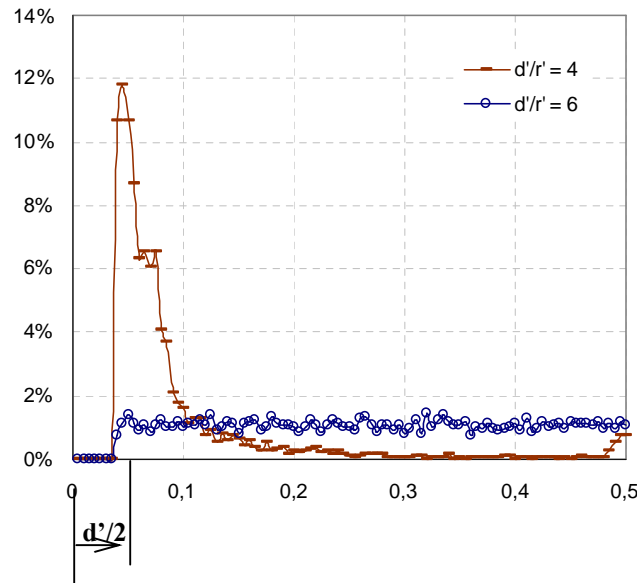


Figure 3.7 distribution des particules par rapport au centre du pore donné pour différentes tailles de particules en présence des interactions répulsives de type physico-chimiques.

La présence des interactions répulsives particule-paroi favorise l'étalement du dépôt sur la paroi (voir chapitre IV). Pour cette raison, la plupart des études sur la formation du dépôt de particules sur une surface filtrante ne considèrent que des interactions attractives entre les particules et la paroi.

Dans notre étude on ne considère que les interactions attractives particule/paroi au cours du dépôt de la première particule sur la paroi.

Dans la figure 3.8, nous avons présenté un histogramme déterminant la distribution des particules par rapport au centre du pore avec et sans interactions physico-chimiques. En présence des forces attractives, l'allure des courbes diffère selon les tailles de particules. En effet, pour les particules de petits diamètres, deux pics sont présentés, ce qui n'est pas le cas pour les grosses particules.

En absence des forces physico-chimiques, la même allure est obtenue pour les différentes tailles de particules avec une légère modification pour une taille de particule très petite. Le taux de variation des courbes diffère d'une courbe à une autre. Ceci est du à la variation de la taille de particule.

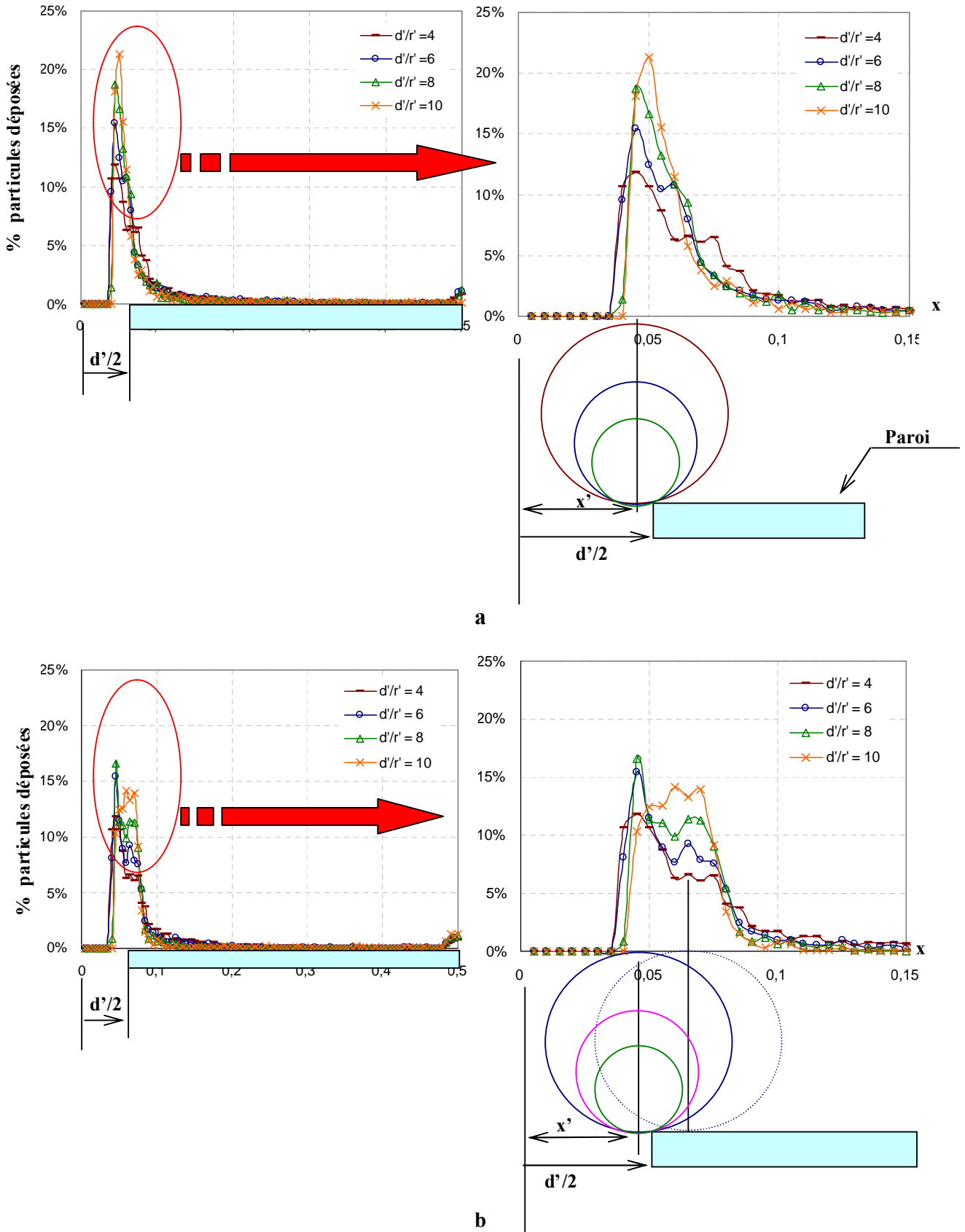


Figure 3.8 distribution des particules par rapport au centre du pore donné pour différentes tailles de particules : a) en présence des interactions attractives de type physico-chimiques, b) en absence des forces physico-chimiques.

Dans tous les cas étudiés, on constate l'existence de deux pics plus ou moins marqués correspondants à deux positions préférentielles de la particule par rapport au pore de la paroi.

Une première position correspond à une distance $\frac{d'}{2} - r' < x' < \frac{d'}{2}$ et une deuxième position préférentielle pour $x' > \frac{d'}{2}$, varie selon la taille de la particule et les conditions physico-chimiques appliquées.

En effet, si nous considérons (x', y') les coordonnées du centre de la particule mesurées relativement par rapport au centre du pore, nous constatons que la distance pour

$\frac{d'}{2} - r' < x' < \frac{d'}{2}$ correspond à la trajectoire critique pour laquelle deux conditions sont vérifiées :

1. cette distance est le lieu des points du centre de la particule tombant sur un arc circulaire de rayon r' à partir du bord de pore.

$$y'^2 + \left(x' - \frac{d'}{2}\right)^2 = r'^2 \quad (3.2)$$

2. la normale unitaire \bar{n}_1 à l'arc circulaire (en tiret pointillé) coïncide avec la normale unitaire \bar{n}_2 à la trajectoire de la particule, $y' = f(x')$, au point $(x', y') \Big|_{\frac{d'}{2} - r' \leq x' \leq \frac{d'}{2}}$ où les deux courbes sont tangentes.

$$\bar{n}_1 = \frac{\left(\frac{d'}{2} - x'\right)\bar{x} + y'\bar{y}}{\left[\left(\frac{d'}{2} - x'\right)^2 + y'^2\right]^{1/2}} \quad (3.3)$$

$$\bar{n}_2 = \frac{-(df/dx')\bar{x} + \bar{y}}{\left(1 + (df/dx')^2\right)^{1/2}} \quad (3.4)$$

Cette deuxième condition est satisfaite en exigeant que \bar{n}_1 et \bar{n}_2 soient parallèles et que y' et x' soient rapportés par l'équation (3.2) à ce point. Ainsi, quand nous égalisons les termes des équations (3.3) et (3.4) et éliminons y' en utilisant l'équation (3.2), nous obtenons :

$$-\frac{df}{dx'} = \frac{x' - \frac{d'}{2}}{\left(r^2 - \left(x' - \frac{d'}{2}\right)^2\right)^{1/2}} \quad (3.5)$$

Les équations (3.2) et (3.5) définissent la trajectoire critique où la capture est assurée par une interception directe.

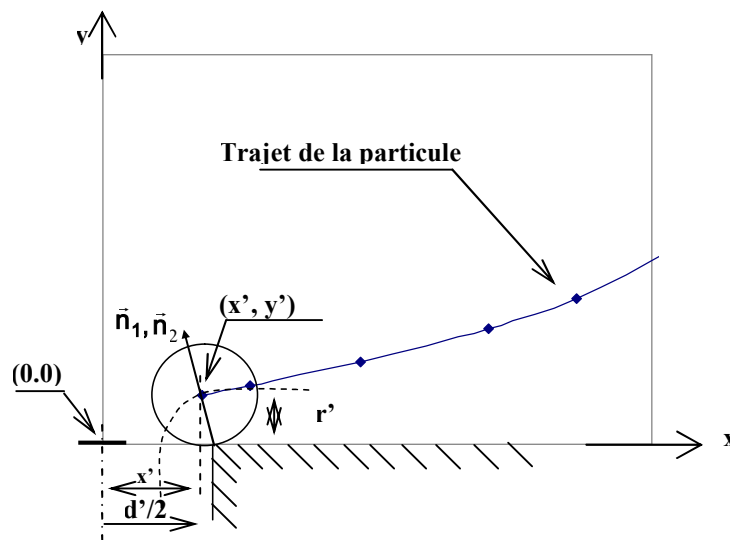


Figure 3.9 Position préférentielle de la particule par rapport au pore définie par la coïncidence des vecteurs et au point de la tangente à l'arc circulaire de rayon r mesuré relativement au bord du pore et la trajectoire de la particule.

Il est à noter aussi que le nombre de particules capturées par la paroi en présence des interactions physico-chimiques est supérieur à celui obtenu sans interactions. Nous avons tracé la courbe du potentiel d'interaction total ($V't$) existant entre la particule et la paroi (figure 3.6) pour différentes tailles de particule : deux, quatre et cinq fois plus petite que la taille du pore. Nous n'avons pris en compte que le potentiel répulsif de double couche et le potentiel d'attraction de Van der Waals.

Nous remarquons que la barrière de potentiel à franchir par les particules, est très importante. La distance de séparation entre la particule et la paroi, lors du franchissement de cette barrière est inférieure à 0.01. Nous observons que le deuxième minimum attractif de la courbe du potentiel d'interaction n'existe plus.

Nous vérifions qu'en présence d'une interaction physico-chimique attractive entre particule et paroi, la diminution de la taille de la particule augmente la densité de probabilité de capture de

la particule, où la particule en mouvement est capturée dès qu'elle s'approche de la surface filtrante par diminution de la distance de séparation entre particule/paroi lors du franchissement.

3.3.2 Taille de pore variable

Cette partie concerne l'étude de la densité de probabilité de capture de la première particule sur une paroi de porosité variable. Les simulations ont été réalisées pour une taille de particule fixée $2.r'=0.05$ et quatre tailles de pore $d'=4.r', 6.r', 8.r'$ et $10.r'$. La longueur des mailles du maillage **K** (maillage de perméabilité) est égale à la taille de la particule. Les dimensions de la cellule Hele - Shaw sont fixées à $L'_x=1$ et $L'_y=3$. Le principe de la procédure est le même que précédemment pour l'étude de la densité de probabilité de capture de la première particule dans le cas d'une taille de pore fixée.

Comme nous l'avons signalé dans le paragraphe précédent, la capture de la particule par la paroi est influencée par les interactions physico-chimiques particule/paroi. Toutefois, l'effet attractif est prédominant en s'approchant de la paroi. Ainsi, l'étude de la densité de probabilité de capture d'une particule à partir d'une position initiale aléatoirement choisie, a été réalisée avec des interactions attractives élevées de type Van der Waals avec la paroi.

Sur la figure 3.10 nous présentons l'évolution du pourcentage de nombre de particules déposées en fonction de la grandeur x avec interactions attractives élevées avec la paroi.

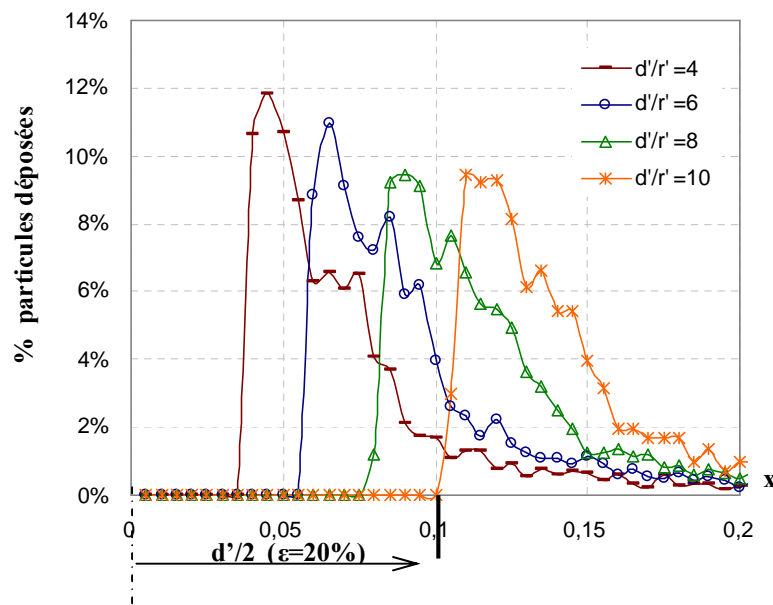


Figure 3.10 variation du pourcentage de particules déposées en fonction de x (distance par rapport au centre du pore) pour différentes tailles de pore en présence des interactions attractives élevées.

Il est important de noter que l'allure générale des courbes est similaire. Cependant, nous constatons l'existence de deux pics plus ou moins marqués correspondants à deux positions préférentielles de la particule par rapport au pore de la paroi. Un pic remarquable correspond à une distance $\frac{d'}{2} - r' < x' < \frac{d'}{2}$. Le décalage des courbes correspond à la variation de la porosité de la paroi d'un cas à l'autre. Pour une taille de pore beaucoup plus large que la taille de la particule ($\varepsilon \geq 20\%$), nous remarquons la présence de trois pics au niveau de la zone $\frac{d'}{2} - r' < x' < \frac{d'}{2}$, représentant la position du centre de la particule par rapport au centre du pore. L'augmentation du nombre de pics dans cette zone est due à l'augmentation de la distance $[\frac{d'}{2} - r', \frac{d'}{2}]$ par augmentation de la taille de pore alors que la taille de la particule prise est fixe.

D'après la figure 3.10, nous constatons que la diminution de la taille du pore augmente le nombre de particules capturées par la paroi. Dans tous les cas, les particules sont plus petites que le pore. Les pores de plus forts diamètres vont augmenter le nombre de passage de particules à travers le pore. Ceci crée une augmentation du pourcentage de capture des particules plus forte pour les pores de faibles diamètres et un pic remarquable plus important.

En synthétisant les résultats obtenus pour la distribution des particules par rapport au centre du pore donné en présence des interactions attractives particule /pore dans les deux cas étudiés (taille de pore fixée et variable), on aura sur le tableau 3.1 :

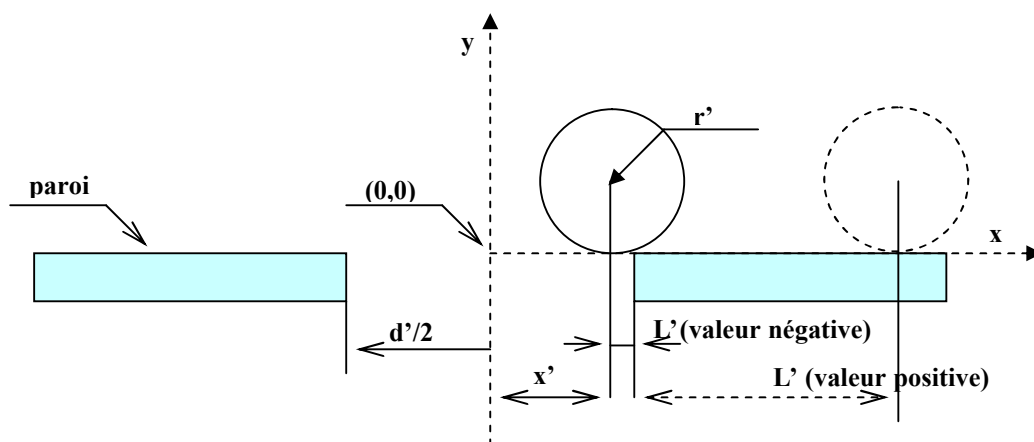


Figure 3.11 présentation de la distribution des particules par rapport au bord du pore

Tableau 3.1 détermination des distances entre le bord du pore et le centre de la particule correspondant aux points d'impacts pour :a) taille de pore fixée, b) taille de pore variable.

(a)

d'=0.1				
	d'/r'=4	d'/r'=6	d'/r'=8	d'/r'=10
1^{er} pic (L')	-0.005	-0.005	-0.005	0.01
2ème pic (L')	0.015	0.015	----	-----

(b)

r'=0.05				
	d'/r'=4	d'/r'=6	d'/r'=8	d'/r'=10
1^{er} pic (L')	-0.005	-0.01	-0.01	-0.015
2ème pic (L')	0.015	0.01	0.005	0.01

Ici L' est la distance entre le bord du pore et le centre de la particule (figure 3.11).

En travaillant que sur la moitié de la paroi (dans notre cas la moitié droite), on désigne par les

signes (-) dans le tableau les particules se trouvant dans la zone $x' < \frac{d'}{2}$. Les autres valeurs

correspondent à la position de la particule dans la zone $x' > d'/2$.

3.4 Densité de probabilité de capture de la première particule sur la paroi à partir de positions initiales uniformément réparties

Le même travail que précédemment est effectué, mais cette fois avec une position initiale choisie de la particule. Vu la symétrie du problème, nous ne travaillons que sur la moitié de la paroi. Nous nous intéressons ici donc à la répartition spatiale des points d'impact sur la moitié de la paroi. La méthode utilisée est identique à celle employée par Frey et al. (1999, 2000)

Nous déterminons la densité de probabilité de capture $dP(X)$ en fonction de la répartition des points d'impact, le long du contour du domaine. L'origine de l'abscisse $X = 0$, correspond au bord de la paroi.

La densité de probabilité de capture est calculée en utilisant $n+1$ trajectoires (dans notre étude $n+1 = 100$). Nous choisissons $n+1$ points uniformément répartis dans la section d'entrée. Le calcul de chaque trajectoire donne un point d'impact d'abscisse X sur la paroi.

Les $n+1$ points initiaux étant uniformément répartis, les $n+1$ points d'impact divisent la paroi en $n+1$ segments $I_i = [X_i, X_{i+1}]$ équiprobables (figure 3.12). C'est-à-dire que :

$$P(X_i < x < X_{i+1}) = \frac{1}{n} \quad (3.5)$$

Par définition, la densité de probabilité $dP(X)$ correspond à la probabilité qu'à un point d'impact d'être entre X et $X+dX$. Soit :

$$dP(X) = P(X < x < X + dX) \quad (3.6)$$

Si l'on suppose que la densité de probabilité est constante par élément, on a :

$$\forall X \in I_i, P(X < x < X + dX) = \alpha \quad (3.7)$$

Mais comme

$$\int_{X_i}^{X_{i+1}} P dx = \frac{1}{n} = \alpha (X_{i+1} - X_i) \quad (3.8)$$

On trouve finalement que la densité de probabilité est directement donnée par la longueur de l'intervalle entre deux points d'impact successifs :

$$\forall X \in I_i, dP(X) = \frac{1}{n} \frac{1}{X_{i+1} - X_i} \quad (3.9)$$

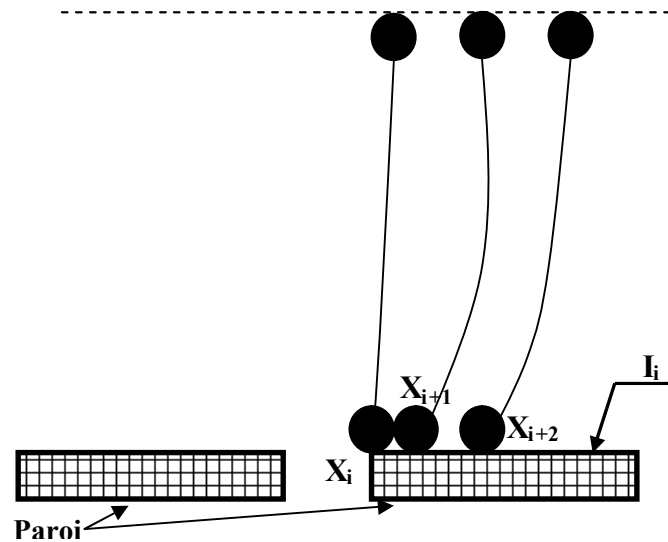


Figure 3.12 Points d'impact sur une paroi

La figure 3.13 représente la densité de capture $dP(X)$ en fonction de l'abscisse X le long de la paroi. Les courbes sont obtenues avec une taille de pore fixée $d'=0.1$ et en présence des interactions physico-chimiques attractives avec la paroi. Les différents cas tracés correspondent à plusieurs valeurs de la taille de particules.

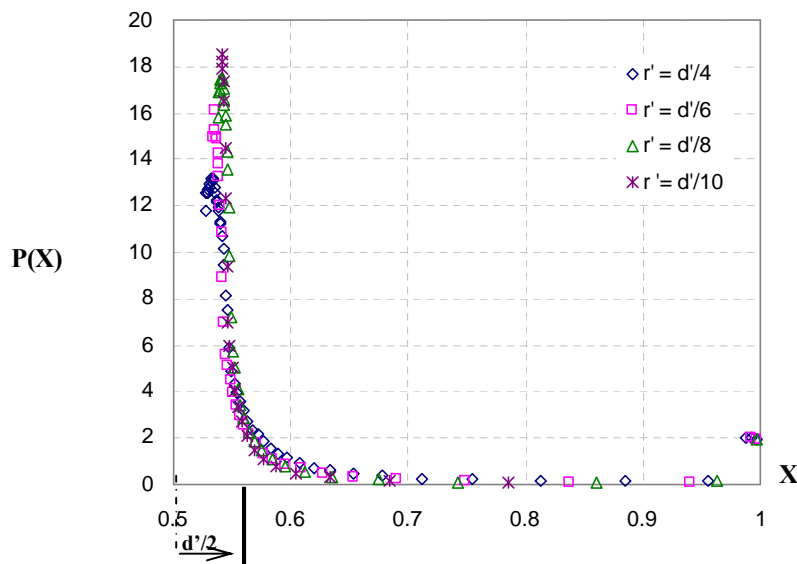


Figure 3.13 Densité de probabilité de capture le long de la moitié de paroi

La figure 3.13 permet de montrer que la densité de probabilité de capture admet un maximum au voisinage de $X = 0.55$, c'est-à-dire au voisinage du bord de pore de la paroi. Ceci signifie que le dépôt de la première particule se fera préférentiellement en ce point.

particulier plutôt que sur le reste de la paroi. Pour bien visualiser ce maximum, nous avons agrandi la figure au voisinage du pore (figure 3.14).

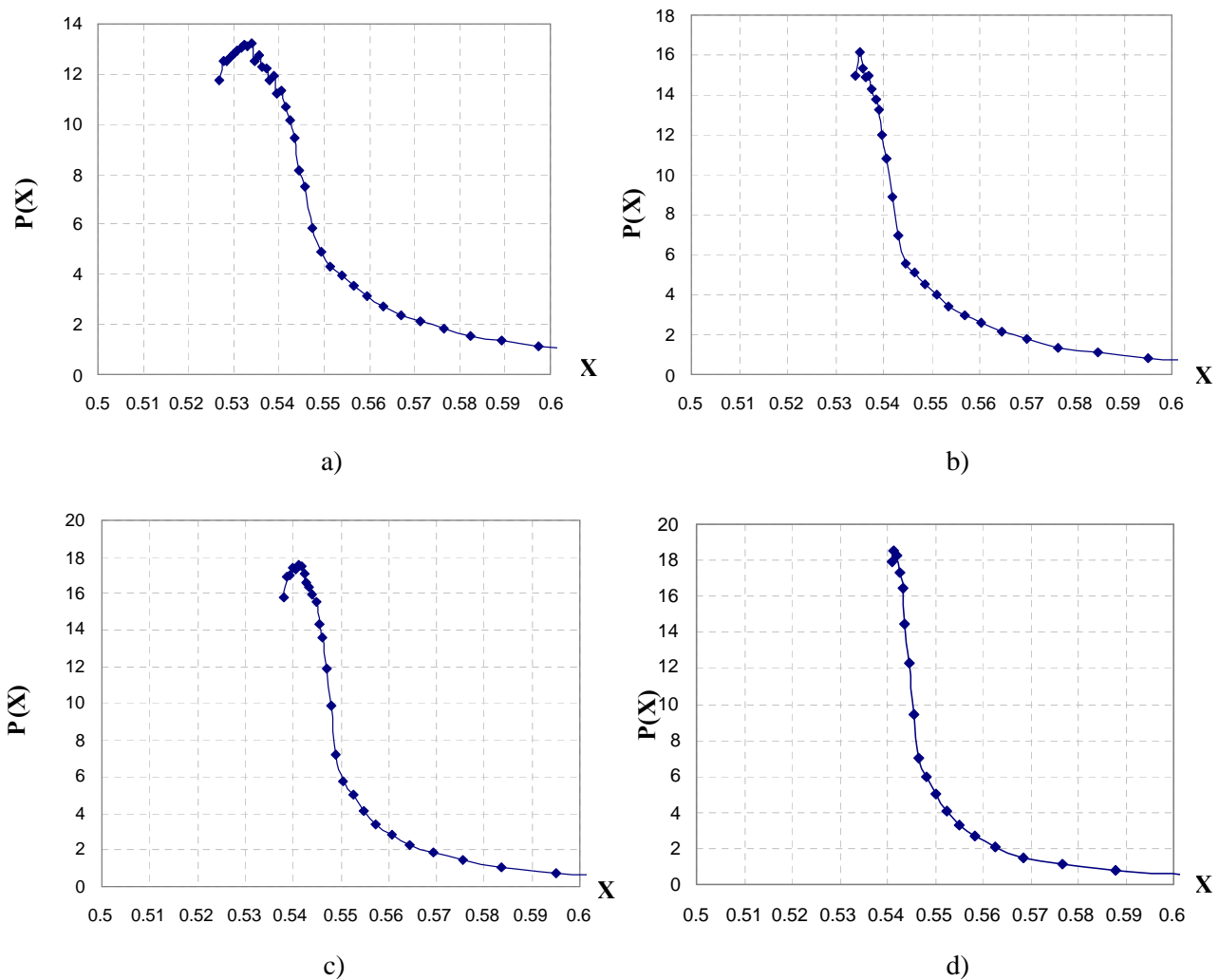


Figure 3.64 Densité de probabilité de capture le long de la moitié de la paroi :
a) $r'=d'/4$, b) $r'=d'/6$, c) $r'=d'/8$, d) $r'=d'/10$.

Nous avons constaté que le maximum dans tous les cas est situé dans un segment $[X_i, X_{i+1}]$ appartenant à la zone $[\frac{d'}{2} - r', \frac{d'}{2}]$. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés dans le paragraphe précédent. En variant la taille de la particule, la répartition spatiale du dépôt est modifiée. L'augmentation de la taille de particules tend, d'une part, à élargir le lieu du dépôt au voisinage du pore.

Selon la figure 3.14, nous constatons la présence d'un seul pic contrairement à celui obtenu précédemment. En effet dans ce cas nous avons traité le cas d'un dépôt de 100 particules uniformément répartis dans la section d'entrée. Ce nombre limité de particules va limiter le pourcentage de particules déposées par rapport au centre du pore, d'où la présence

d'un seul pic. La précision du calcul de la densité de probabilité dépend alors directement du nombre de trajectoires calculées. Les résultats obtenus sont en accord avec ceux trouvés par Frey et al. (2000) où la détermination de la densité de probabilité diffère à partir d'un certain nombre de trajectoires (435 trajectoires).

Afin de déterminer la position initiale de la particule à partir de laquelle on peut avoir une densité de probabilité maximale, nous avons tracé les trajectoires du premier point d'impact et la trajectoire pour $P(X)$ la plus élevée pour différente taille de particules (figure 3.15).

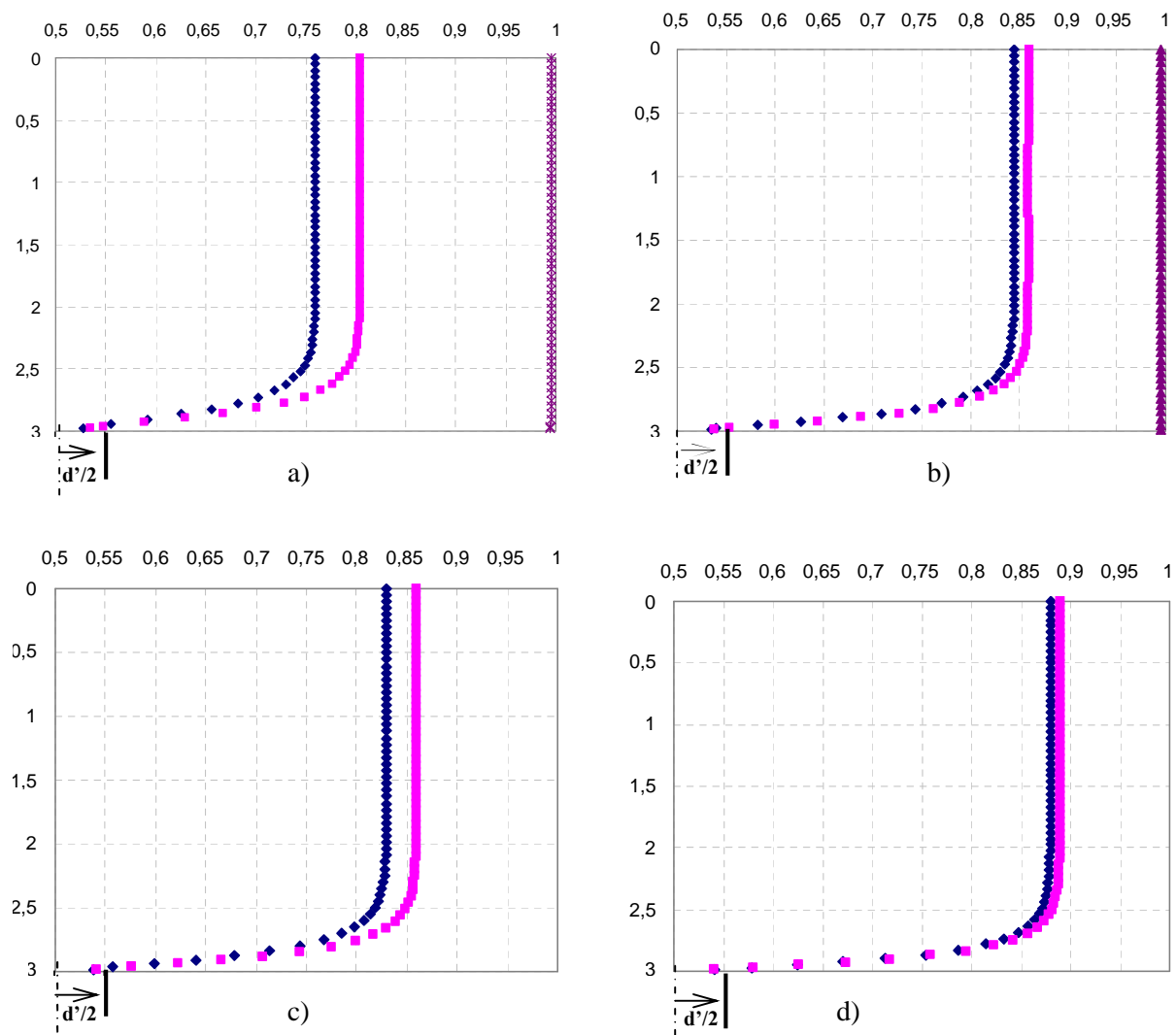


Figure 3.75 Trajets de particules correspondants aux points d'impacts : a) $r'=d'/4$, b) $r'=d'/6$, c) $r'=d'/8$, d) $r'=d'/10$.

— Trajet correspondant au premier point d'impact, — trajet correspondant au point d'impact pour $P(X)$ maximum

Dans les mêmes conditions d'étude, nous avons constaté que le premier point d'impact d'une particule de taille plus grande a une position initiale plus proche du pore. En effet, pour une taille de particule deux fois plus petite que la taille du pore, la particule n'est capturée qu'à partir d'une position initiale $x' \geq 0.75$. Pour $r' = d'/10$, la capture de la particule n'est assurée qu'à partir d'une position initiale $x' \geq 0.88$. Ici (x', y') représente les coordonnées du centre de la particule mesurées relativement au bord de la paroi. Ceci est dû à l'importance de l'effet de la taille de particule sur la formation du dépôt où le pourcentage du passage de la particule à travers le pore est de plus en plus important lorsque la taille de la particule est faible.

En traçant la trajectoire correspondant au point d'impact ayant une densité de probabilité de capture importante, nous avons constaté d'après la courbe 3.14 que pour avoir une $P(X)$ maximale il faut que la particule ait une position initiale comprise entre 0.8 et 0.9 selon la taille de la particule. Pour bien comprendre ce phénomène, nous avons agrandi les deux trajectoires au niveau du pore pour $r' = d'/4$ et $r' = d'/8$ (figure 3.16).

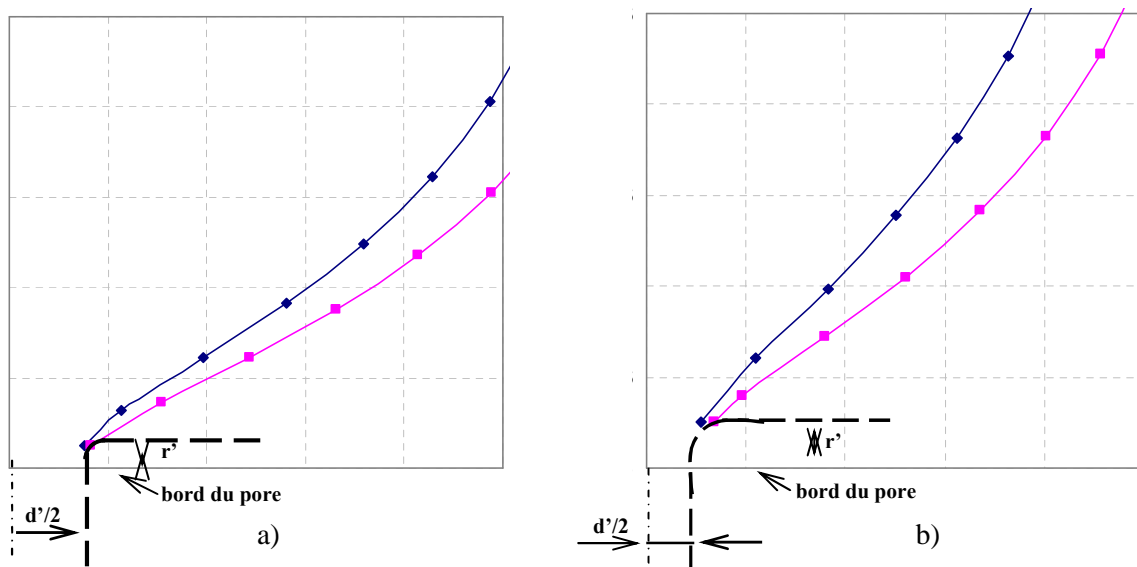


Figure 3.86 Trajets de particules correspondants aux points d'impacts pour a) $r' = d'/8$ et b) $r' = d'/4$
 — Trajet correspond au premier point d'impact, — trajet correspond au point d'impact pour $P(X)$ maximum

Nous remarquons que dans les deux cas les centres de particules appartiennent à un arc circulaire de rayon r' (la distance de capture) mesuré à partir du bord de pore et que les trajectoires de particules à ces points sont tangentes à cet arc.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons déterminé la densité de probabilité de capture de la première particule déposée sur la paroi poreuse. L'étude a été réalisée par deux manières différentes : (1) avec position initiale aléatoirement choisie de la particule et (2) à partir d'une position initiale bien déterminée. Nous avons caractérisé l'influence de la taille de particule, de la porosité et des forces physico-chimiques. Les résultats montrent l'existence d'une trajectoire critique de la particule où la densité de capture de la particule occupant cette trajectoire est maximale.

Bibliographie

Chidaglia C., Arcangelis L., Hinch J., Guazzelli E., *Hydrodynamic interactions in deep bed filtration*, Phys. Fluids, 8, 6-14, 1996.

Dagan Z., Weunbaum S., Pfeffer R., *Theory and experiment of three dimensional motion of a freely suspended spherical particle at the entrance to a pore at low Reynolds number*, Chemical Engineering Science, 38, 583-596, 1983.

Frey J.M., Schmitz P., Dufreche J., Pinheiro I.G., *Particle deposition in porous media: Analysis of hydrodynamic and weak inertial effects*, Transport in porous media, 37, 25-54, 1999.

Frey J.M., Schmitz P., *Particle transport and capture at the membrane surface in cross-flow microfiltration*, Chemical Engineering Science, 55, 4053-4065, 2000.

Gassara D., Ayadi A., Schmitz P., Duru P., *densité de probabilité de capture de la première particule à la surface d'une membrane filtrante modèle*, 8ème journées d'études sur les milieux poreux, JEMP 2007.

Kao J.N., Wang Y., Pfeffer R., Weinbaum S., *A theoretical model for nucleopore filters including hydrodynamic and molecular wall interactions effects*, Journal of Colloid and Interface Science, 121, 543-557, 1988.

Wang Y., Kao J., Weinbaum S., Pfeffer R., *On the inertial impaction of small particles at the entrance of a pore including hydrodynamic and molecular wall interaction effects*, Chemical Engineering Science, 41, 2845-2864, 1986.

Chapitre 4. SIMULATION DYNAMIQUE DE LA FORMATION DU DEPOT DE PARTICULES SUR UNE SURFACE POREUSE

4.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la présentation et à la discussion des résultats obtenus à partir d'une étude statistique menée, sur un grand nombre de dépôts (typiquement 100 dépôts indépendants), et réalisée avec des particules en suspension, supposées sphériques, de même rayon et en faible concentration dans le fluide. Cette étude a deux objectifs : d'une part, l'étude de l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre et d'autre part, l'analyse du rôle joué par la taille de la particule sur la formation du dépôt ainsi que sur la cinétique de construction du dépôt.

La cinétique de colmatage du milieu poreux est contrôlée par des phénomènes se développant à deux échelles. A l'échelle macroscopique, nous suivons les variations de la perméabilité du milieu poreux. A l'échelle microscopique, nous déterminons l'évolution de la quantité de matière déposée et caractérisons le mode de formation du dépôt. C'est selon ces deux axes que les résultats sont présentés et discutés.

Dans notre étude, nous avons imposé une différence de pression ΔP fixée aux bornes de la cellule de Hele-Shaw, puisque l'étude a été conçue pour fonctionner à pression constante (chapitre 2).

Avant de présenter les résultats obtenus pour différentes conditions d'études, nous présentons une revue d'analyse des résultats fournis par des diverses études expérimentales et théoriques, en précisant les influences hydrodynamiques, physico-chimiques qui ont été relevées sur la formation de dépôt de particules.

4.2 Revue de littérature

Il convient à souligner que jusqu'à présent, l'étude de l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur les phénomènes de capture des particules a été effectuée surtout au cours d'un processus de filtration en masse. En effet, Pinheiro (1996) a étudié l'influence de conditions hydrodynamiques sur le phénomène de transport de dépôt de particules à l'intérieur d'un milieu poreux. Il a démontré que l'augmentation de la vitesse de filtration favorise le transport des particules en limitant leur dépôt sur les parois. Cela se traduit à l'échelle macroscopique, par une diminution lente de la perméabilité du milieu poreux et par une augmentation de la concentration effluente.

Vaidyanathan et Thien (1989) et Rodier et *al.* (1993), ont étudié l'influence de la force ionique sur la formation du dépôt. Ils ont montré que l'augmentation de la force ionique entraîne une augmentation de l'efficacité de capture des particules.

Tobiason et O'Mélia (1988) ont réalisé des expériences avec des particules de latex de 12µm au cours desquelles ils ont fait varier le pH. Au fur et à mesure que le pH diminue, le potentiel zêta fait de même et, par conséquent, la force répulsive de double couche diminue. Néanmoins, pour le pH égal à 3, le taux initial de capture baisse, pour ensuite augmenter. Cela met en évidence l'effet de recouvrement du filtre et démontre que l'interaction particule/particule est plus favorable que l'interaction particule/milieu poreux.

Il est à noter l'effet important des conditions de caractéristiques physiques et physico-chimiques sur la formation du dépôt au cours d'une filtration en masse. Mais, est ce qu'elles ont aussi des effets sur la formation du dépôt au cours d'une filtration de surface ? Pour cette raison, quelques travaux ont été effectués dans le but d'étudier cette influence sur le phénomène de capture des particules sur une surface filtrante.

4.2.1 Influence des caractéristiques physiques.

a. La vitesse

Salehi (1996) a étudié les mécanismes de rétention hydrodynamique de suspensions colloïdales en milieux poreux modèles (membranes) et, en particulier, l'influence de la vitesse. Cette étude montre que, dans les dépôts de type "de surface", la quantité retenue augmente avec l'augmentation de la vitesse, jusqu'à un nombre de Peclet : $Pe = 32$, et décroît au-delà pour tendre progressivement vers zéro. Cela a été interprété comme une compétition entre les forces hydrodynamiques et les forces répulsives de double couche. Les forces hydrodynamiques sont décomposées en composantes normale et tangentielle. La composante normale à la surface favorise le dépôt par réduction de la barrière de potentiel dû à la force de double couche. La composante tangentielle favorise le phénomène de fuite qui, lui est responsable d'une diminution de la rétention au-delà du Pe maximum.

Dans la même thématique, Hwang et *al.* (2001) ont simulé la migration et la distribution de particules bimodales au cours d'une microfiltration dans un canal possédant deux plaques parallèles dont l'une est perméable. Au cours de leurs déplacements, les particules sont soumises à la force hydrodynamique, force de gravité, force d'inertie, force D.L.V.O et force Brownienne. Dans cette étude, les auteurs ont étudié l'effet de la vitesse d'écoulement sur la structure du dépôt de particules binaires (figure 4.1). Puisque la vitesse

d'écoulement augmente le pourcentage de capture des particules, un dépôt plus compact est construit.

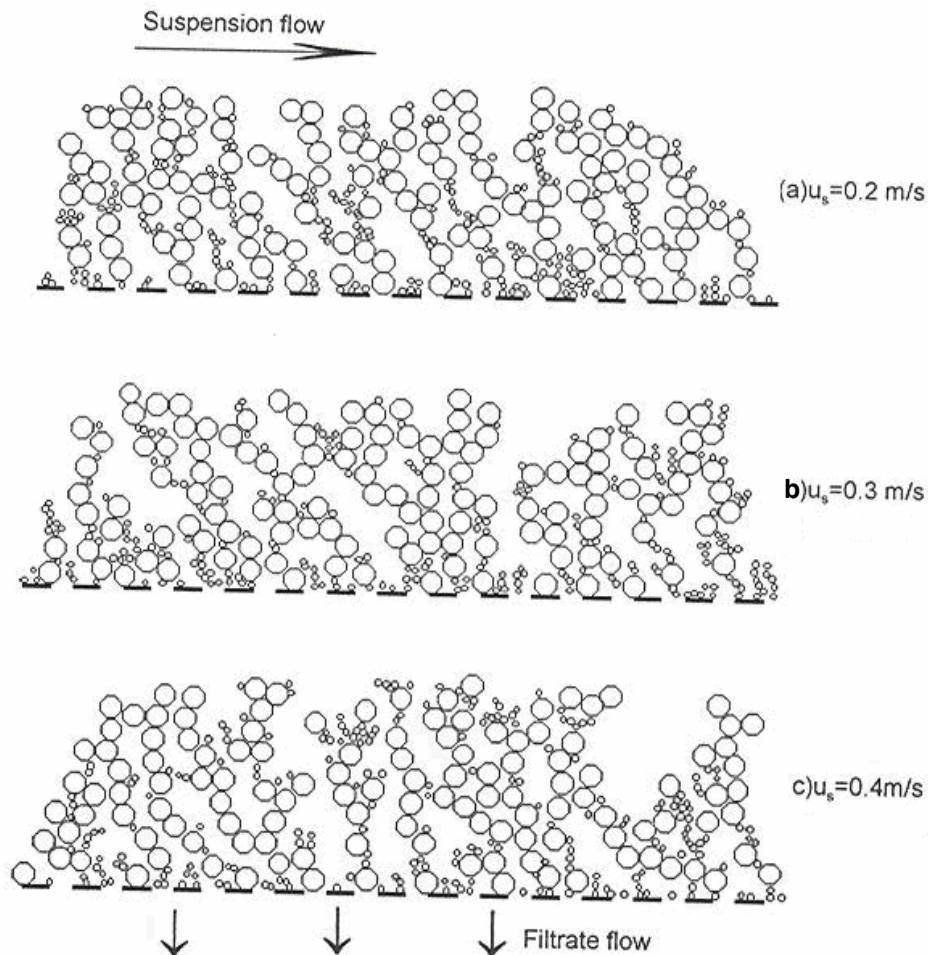


Figure 4.1 Structures de dépôt de particules binaires sous diverses vitesses d'écoulement.

(d'après Hwang et al., 2001).

b. La taille et la concentration

En s'intéressant à la formation du dépôt de particules sur une surface filtrante, Chang et al. (1996) ont étudié l'effet de la taille de particules et la distribution des tailles sur le flux de perméat au cours d'une microfiltration des suspensions de latex. Des expériences effectuées avec une, deux et trois tailles différentes de suspensions ont clairement prouvé que la taille de particules et la distribution des tailles ont un grand effet sur la qualité de perméat. L'effet était plus significatif quand la taille de particules est plus petite que celle du pore de la membrane. En effet, le débit augmente avec l'augmentation de la taille de particules pour des particules monodispersées. Pour des particules polydispersées, le débit diminue avec

l'augmentation de tailles de particules. Cependant la qualité de filtrat s'est améliorée en raison de la formation d'une couche de dépôt de particules de tailles variables. Par conséquent, en ajoutant des particules plus grosses dans la suspension, on pourrait filtrer des particules fines à travers des membranes de taille de pores plus larges. Ces résultats sont en accord avec ceux démontrés par Fu et *al.* (1998). En se basant sur la loi d'équilibre des forces, les auteurs ont analysé l'effet de la taille de particules, la distribution des tailles de particules et le potentiel de surface sur la structure du dépôt. Le modèle montre que la résistance du dépôt dépend de la taille de particules ainsi que du potentiel de surface. En effet, les petites particules peuvent migrer dans le dépôt de filtration et se concentrer sur la surface de la membrane.

Récemment, Kromkamp et *al.* (2006) ont présenté une étude expérimentale sur le comportement des suspensions en microfiltration. Le dépôt de particules sur la membrane est observé au moyen d'un microscope laser à balayage. Les résultats expérimentaux sont obtenus à partir d'une étude sur le comportement des globules gras du lait. Les expériences sont effectuées à une pression constante avec laquelle il apparaît clairement une diminution forte du débit pour des suspensions de petites tailles. Dans les mêmes conditions expérimentales, des observations ont été effectuées par Ben Hassan (2006) au microscope électronique à balayage (MEB) du tronçon membranaire après différents temps de contact avec deux types de laits : ½ écrémé et entier. La présence de particules de différentes tailles conduit à une structure hétérogène dont la concentration est beaucoup plus importante dans le lait entier (figure 4.2), qui conduit à une diminution plus remarquable du flux du perméat (figure 4.3).

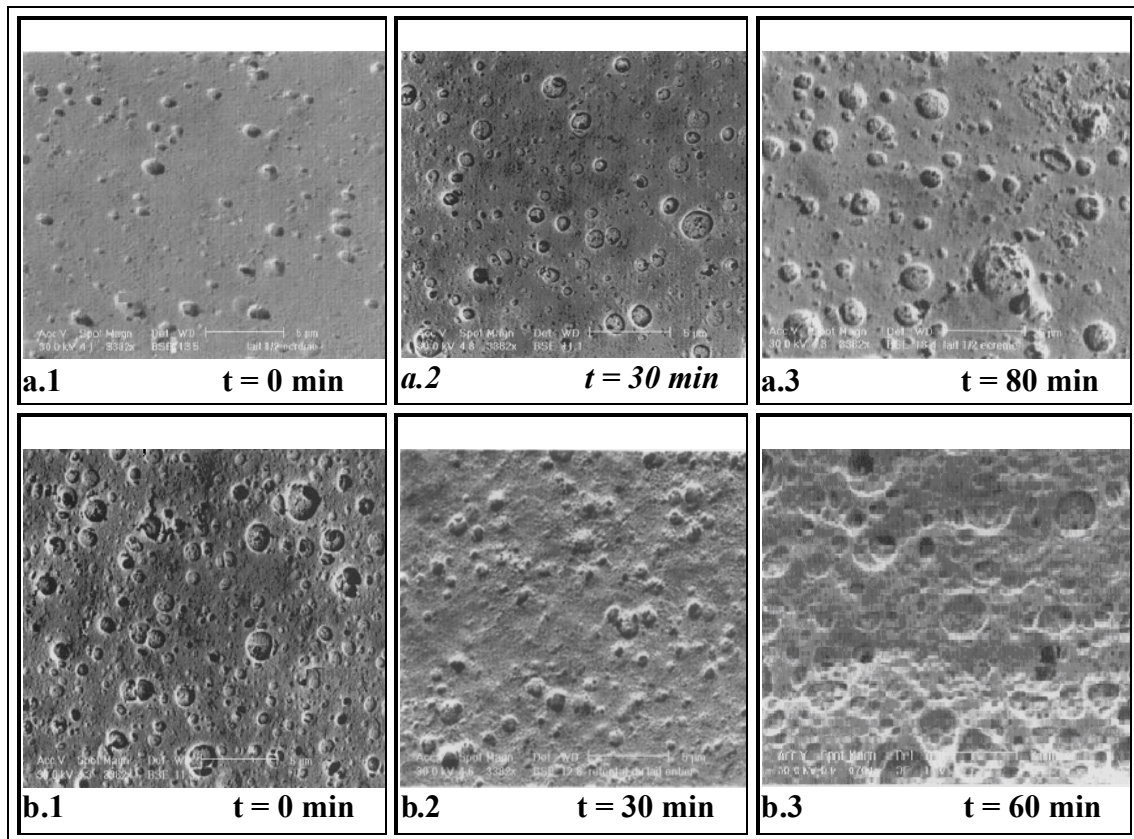


Figure 4.2 Observations en MEB du lait brut et du colmatage au cours du temps

(a : Lait ½ écrémé, b : Lait entier)

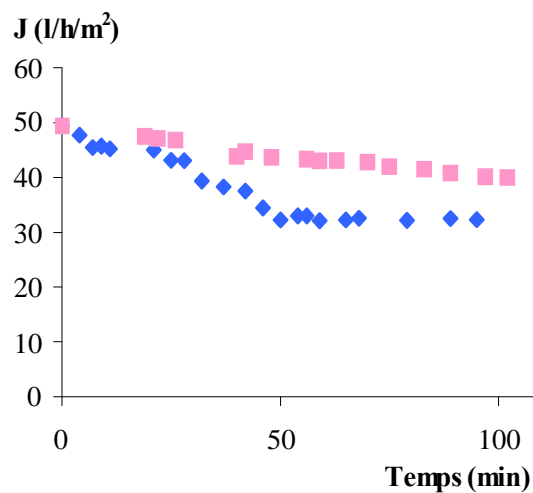


Figure 4.3 Flux de filtrat pour différents types de laits : ■ ½ écrémé, ♦ entier

(d'après Ben Hassan, 2006)

Noël (2006), a étudié la morphologie du dépôt et la variation du débit en fonction de la taille des particules. Son étude est consacrée à la modélisation tridimensionnelle de la formation d'un dépôt lorsqu'il n'y a pas une séparation des échelles. La partie fluide et le

dépôt de particules sont modélisés par une seule équation : l'équation de Brinkman. Dans le cadre de ces hypothèses imposées, l'auteur a montré que le débit décroît d'autant plus vite en fonction du volume de particules déposé que le diamètre des particules est faible.

4.2.2 Influence des caractéristiques physico-chimiques

a. La force ionique

Hong et Elimelech (1997) ont montré que plus la force ionique de l'eau est élevée (ajustement avec du NaCl), plus la perte de flux de perméat est élevée comme cela est montré à la figure 4.4

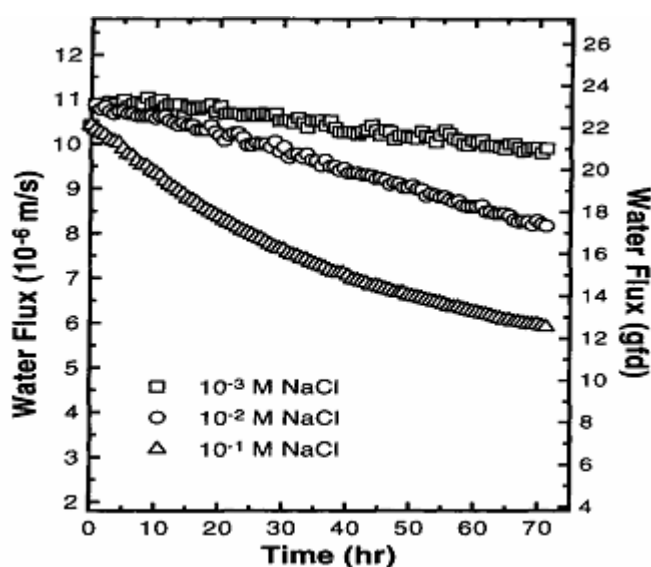


Figure 4.4 L'effet du pouvoir ionique sur le colmatage par MON, ajusté par la variation de la concentration en NaCl. (d'après Hong et Elimelech, 1997)

Ceci s'explique par le fait que la résistance hydraulique du gâteau augmente avec son épaisseur et sa compacité. À une force ionique élevée, la charge électrique de la membrane et celle des macromolécules est réduite d'une manière significative, ce qui réduit la répulsion électrostatique entre ces macromolécules. Par conséquent, le dépôt de MON (matières organiques) sur la surface est facilité (moins de forces de répulsion) et le gâteau devient plus épais.

b. Le pH

En étudiant les facteurs influençant le colmatage des membranes au cours d'une nanofiltration par la MON, Hong et Elimelech (1997) rapportent des expériences où le pH de la solution d'acides humiques a été ajusté à deux valeurs différentes, 4 (acide) et 8 (alcaline),

Les effets du pH sur l'évolution du flux de perméat dans le temps sont présentés à la figure 4.5.

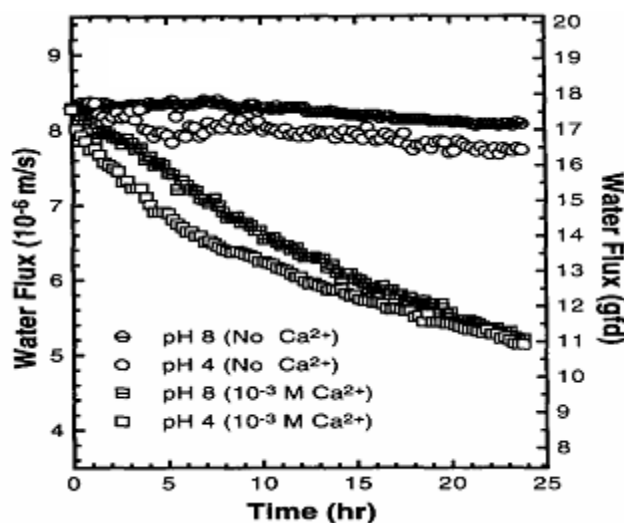


Figure 4.5 L'effet du pH de la solution sur le colmatage par MON.

(d'après Hong et Elimelech, 1997).

Sur cette figure, il apparaît que la perte de flux de perméation est plus accentuée à pH égal à 4 qu'à pH égal à 8, et ce en présence et en absence de Ca^{2+} . Ce comportement est attribué par les auteurs à la réduction de la charge électrique de la surface de la membrane de nanofiltration. Les études préliminaires ont démontré qu'à pH égal à 3, la charge de la surface de la membrane est nulle. De plus, quand le pH diminue, les groupes carboxyliques de la MON deviennent protonés ; ceci réduit la charge des macromolécules organiques. Ces réductions de charges électriques génèrent un gâteau plus compact.

4.2.3 Formation du dépôt

Les expériences montrent que, indépendamment des conditions opératoires, la formation de dépôt à la surface d'un filtre est différente de celle observée en profondeur. A la surface, le dépôt se différencie en termes de morphologie et en termes de masse déposée impliquant une perte de charge de plus en plus élevée.

L'évolution de la formation du dépôt, à la surface d'un filtre en microfiltration tangentielle, a été simulée par Schmitz et *al.* (1993). Les auteurs ont proposé un automate cellulaire basé sur des règles empiriques de déplacement et de capture des particules pour étudier la morphologie de dépôts bidimensionnels en microfiltration tangentielle.

Bratberg et *al.* (2003) ont développé un modèle dynamique basé sur des règles simples de relaxation de particules en fonction d'un angle de capture (paramètre géométrique) pour l'étude des propriétés de structures aléatoires de granulaires bidimensionnels.

Noël (2006) a effectué un modèle d'interaction particule-particule et particule-paroi de type contact capture. Cette modélisation a permis d'une part de déterminer le débit en fonction du volume déposé et d'autre part, de déterminer la morphologie du dépôt obtenu.

Ces études sont limitées par les problèmes liés à la gestion des contacts solides particule-paroi et particule-particule. Les résultats se limitent au cas d'absence des interactions physico-chimiques entre particules et interactions particule-paroi.

En se basant sur les études effectuées, on constate l'effet important de la force ionique, de la taille de la particule et du pH sur la formation du dépôt de particules sur une surface filtrante.

Afin d'étudier l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre, une simulation dynamique de la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle sera présentée dans le paragraphe suivant.

4.3 Simulation dynamique de la formation du dépôt

Notre étude est limitée à un élément unitaire représentatif d'une paroi perforée spatialement périodique comportant un arrangement régulier de pores. Cet élément est constitué d'une cellule Hele Shaw rectangulaire dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule ($2.r'$), de telle sorte que le modèle de Darcy s'applique sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Le fluide s'écoule dans la direction verticale sous l'action d'une différence de pression imposée. Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale aléatoirement choisie et décrivent des trajectoires qui tiennent compte de la structure de l'écoulement et des interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées (Israelachvili, 1985). L'écoulement de Darcy dans le domaine complet est recalculé une fois la particule déposée, sur un champ de perméabilité variable comprenant une région fluide de type Hele-Shaw et une région poreuse correspondant au dépôt.

Les résultats sont interprétés quantitativement, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts (typiquement 100 dépôts indépendants), en termes de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules lancées. Chaque simulation correspond à 100 particules arrivant une par une dans le domaine de calcul. La taille adimensionnelle du pore est prise fixée égale à 0.1.

4.3.1 Influence de la force de Van der Waals

L'analyse de l'influence de la force attractive de type Van der Waals est discutée à partir de la morphologie du dépôt obtenu et de l'évolution de la perméabilité du modèle. L'étude a été effectuée sur deux tailles de particules : $2.r' = 0.05$ et 0.025 .

Cependant, afin d'étudier particulièrement l'effet attractif de Van der Waals, on suppose tout d'abord que l'effet répulsif de double couche est négligeable. À cet effet, la longueur réciproque sans dimensions de Debye-Hueckel (κ') est prise égale à 0.4 pour $r' = \frac{d'}{4}$ et à égale

à 0.8 pour $r' = \frac{d'}{8}$.

a. Morphologie du dépôt

Nous présentons sur la figure 4.6, la structure du dépôt de particules obtenu au cours du temps, pour différentes constantes de Hamaker. La figure montre que quand la taille de particule varie la structure du dépôt obtenu est dendritique. L'ouverture de cette structure croît avec la constante de Hamaker élevée. En effet, en se basant sur l'approche DLVO pour une force ionique élevée (figure 4.7), l'augmentation de la constante de Hamaker augmente l'effet attractif dû au potentiel de Van Der Waals. Cependant la particule en mouvement adhère, dès qu'elle s'approche, à la surface (mur ou particule déjà déposée). Les figures montrent qu'en présence de particules de grandes tailles un pont s'établit autour du pore, et que l'effet attractif est plus important qu'en présence de particules finies auquel cas le dépôt se forme en priorité sur la périphérie du pore.

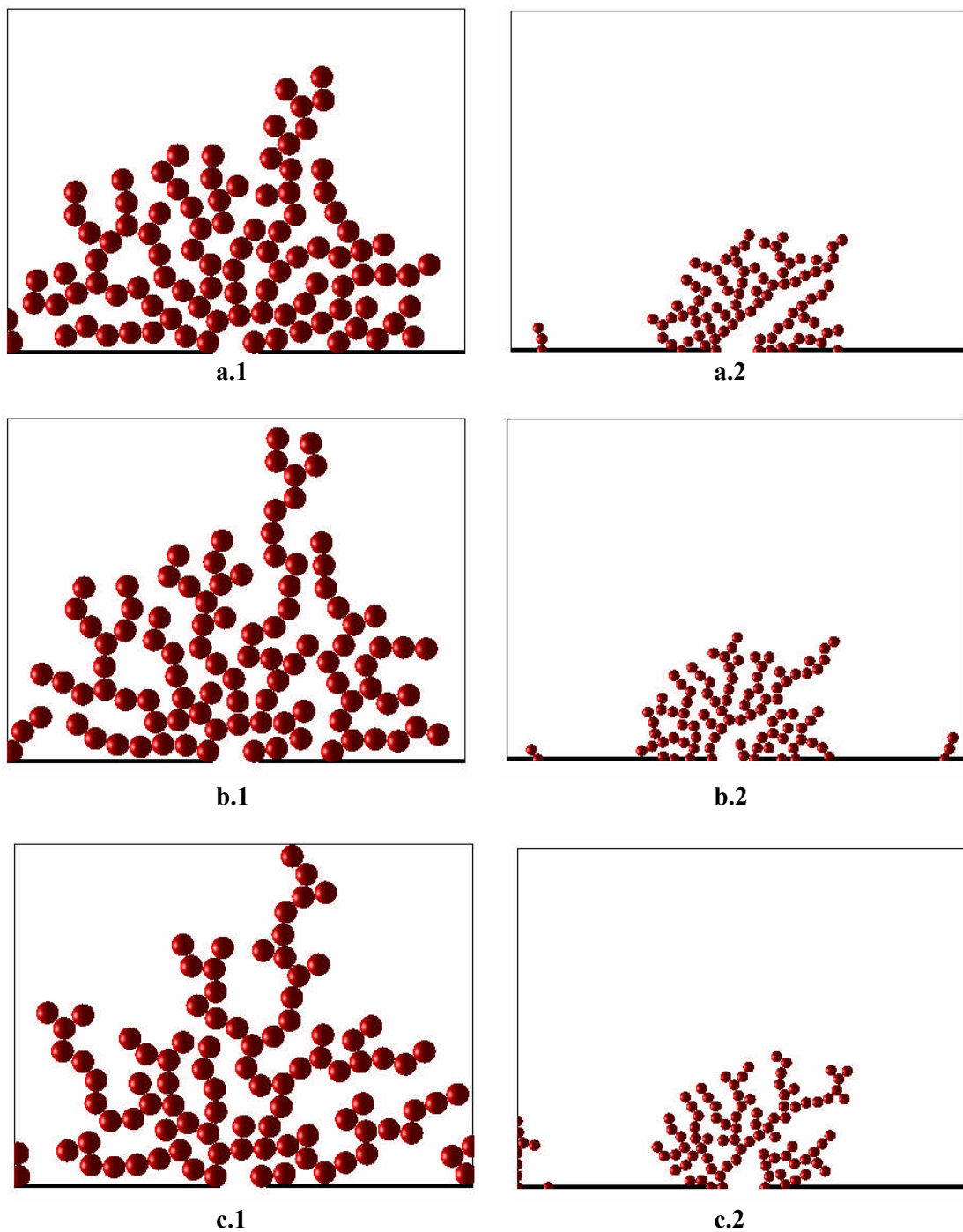


Figure 4.6 Exemples de dépôt de particules : $\Delta P' = 1$, $d' = 0.1$, $r' = d'/4$ à gauche, $r' = d'/8$ à droite
a) $A' = 10^{-7}$ – b) $A' = 10^{-6}$ – c) $A' = 10^{-5}$

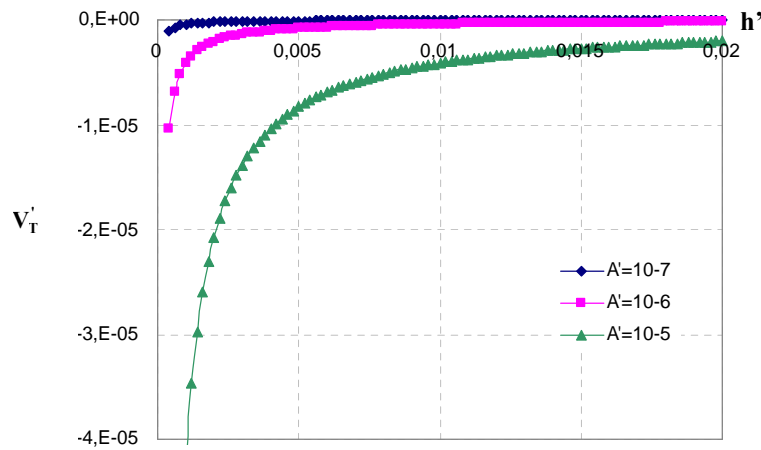


Figure 4.7 potentiel d'interaction en fonction de la distance de séparation h' .

b. La perméabilité

Sur la figure 4.8, nous montrons l'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules injectées. L'allure des courbes obtenues dépend de la constante de Hamaker. En effet en exprimant l'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules injectées, nous observons trois régions. Une première région où les trois courbes se superposent et où la réduction de la perméabilité est forte pour de particules de grandes tailles. Ceci a eu lieu pour un nombre de particules injectées égale à 15 pour $r'=d'/4$ et égale à 25 pour $r'=d'/8$. En effet, les particules de grands diamètres, qui se déposent en premier sur le bord du pore, vont contribuer à la création d'un pont de particules plus proche du centre du pore entraînant par la suite une chute de perméabilité plus importante. La deuxième région est une région de transition dans laquelle la perméabilité diminue graduellement. La troisième région correspond à la région dite stationnaire dans laquelle le colmatage additionnel fait peu évoluer la perméabilité. Un écart est observable entre la courbe $A'=10^{-5}$ et les autres courbes. Cet écart est dû à l'effet attractif élevé pour une constante de Hamaker élevée provoquant par la suite une structure du dépôt très ouverte d'où un milieu plus poreux.

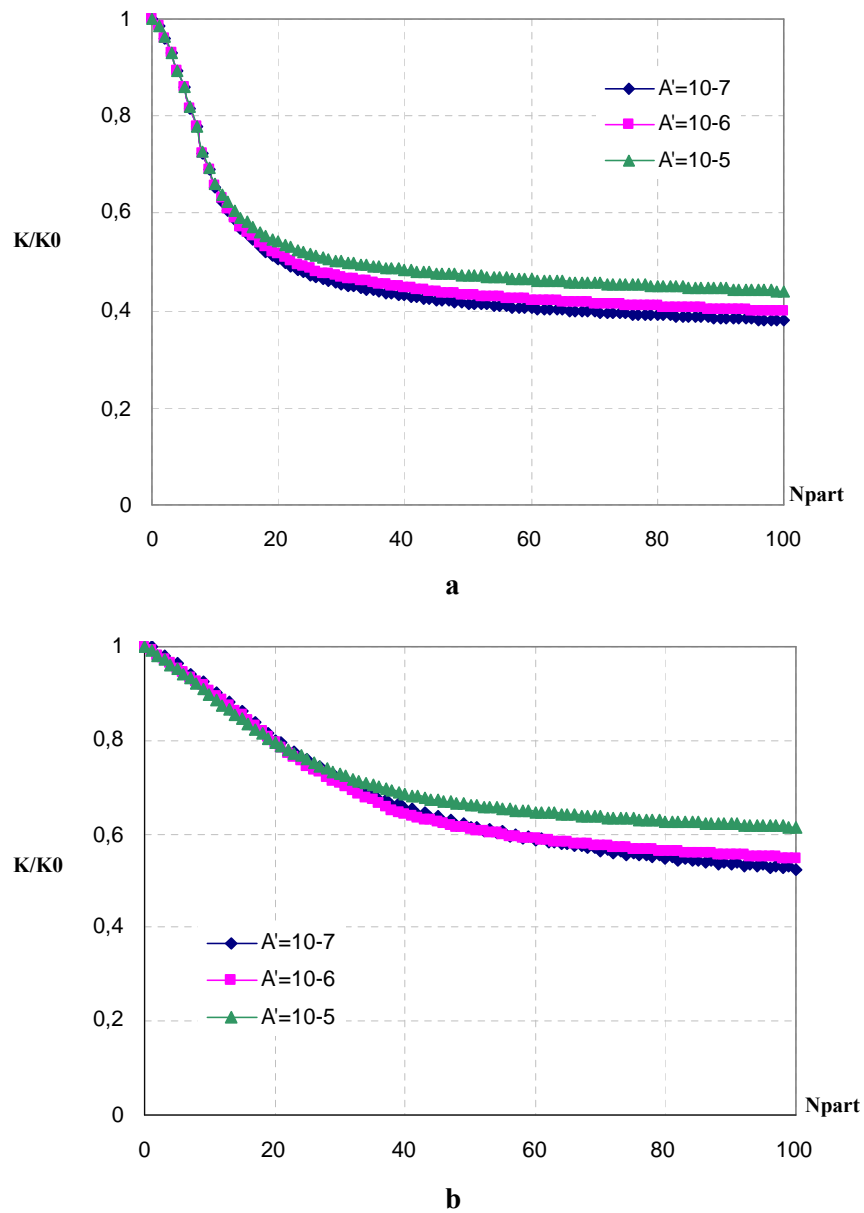


Figure 4.8 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules injectées : influence des effets attractifs
a) $r'=d'/4$, b) $r'=d'/8$.

4.3.2 Influence de la force ionique : (F.I)

Dans la série de simulations suivante, nous avons fixé le gradient de pression à 1, la constante de Hamaker à 10^{-7} et nous avons fait varier la force ionique où l'étude a été réalisée sur trois valeurs différentes de telle sorte que $F.I_3 < F.I_2 < F.I_1$. L'étude a été réalisée pour une taille de pore fixée à 0.1 (sans dimension) et pour deux tailles de particules $r'=d'/4$ et $r'=d'/8$.

a. Morphologie du dépôt

L'influence de la force ionique sur la formation du dépôt est présentée sur la figure 4.9. Nous remarquons que le dépôt obtenu à faible force ionique est plus dense que celui en présence d'une force attractive élevée, mais, les particules ne sont plus en contact. En effet, lorsqu'on diminue la force ionique, la compétition entre l'ensemble des forces qui apparaissent dans l'équation (2.34) se traduit par un agencement plus compact de particules. Celles-ci s'arrêtent lorsqu'elles trouvent une position d'équilibre correspondant à la barrière de potentiel (distance du potentiel maximum) (figure 4.10). Ce phénomène peut s'expliquer si l'on considère que la diminution de la force ionique fait augmenter les effets répulsifs de nature électrochimique entre les particules et la paroi ainsi qu'entre les particules déposées et les particules en suspension. Ceci est dû au fait, qu'en diminuant la force ionique, la longueur réciproque de Debye-Hueckel augmente. Ainsi plus la force ionique diminue, plus les conditions de formation de dépôt sont favorables et le colmatage est aussi atteint plus rapidement. En effet les vingt premières particules déposées progressivement ont formé un pont au-dessus du pore empêchant par la suite le passage des autres particules à travers lui. Comme on pouvait le prévoir, le pont est plus rapidement construit quand les particules sont grandes.

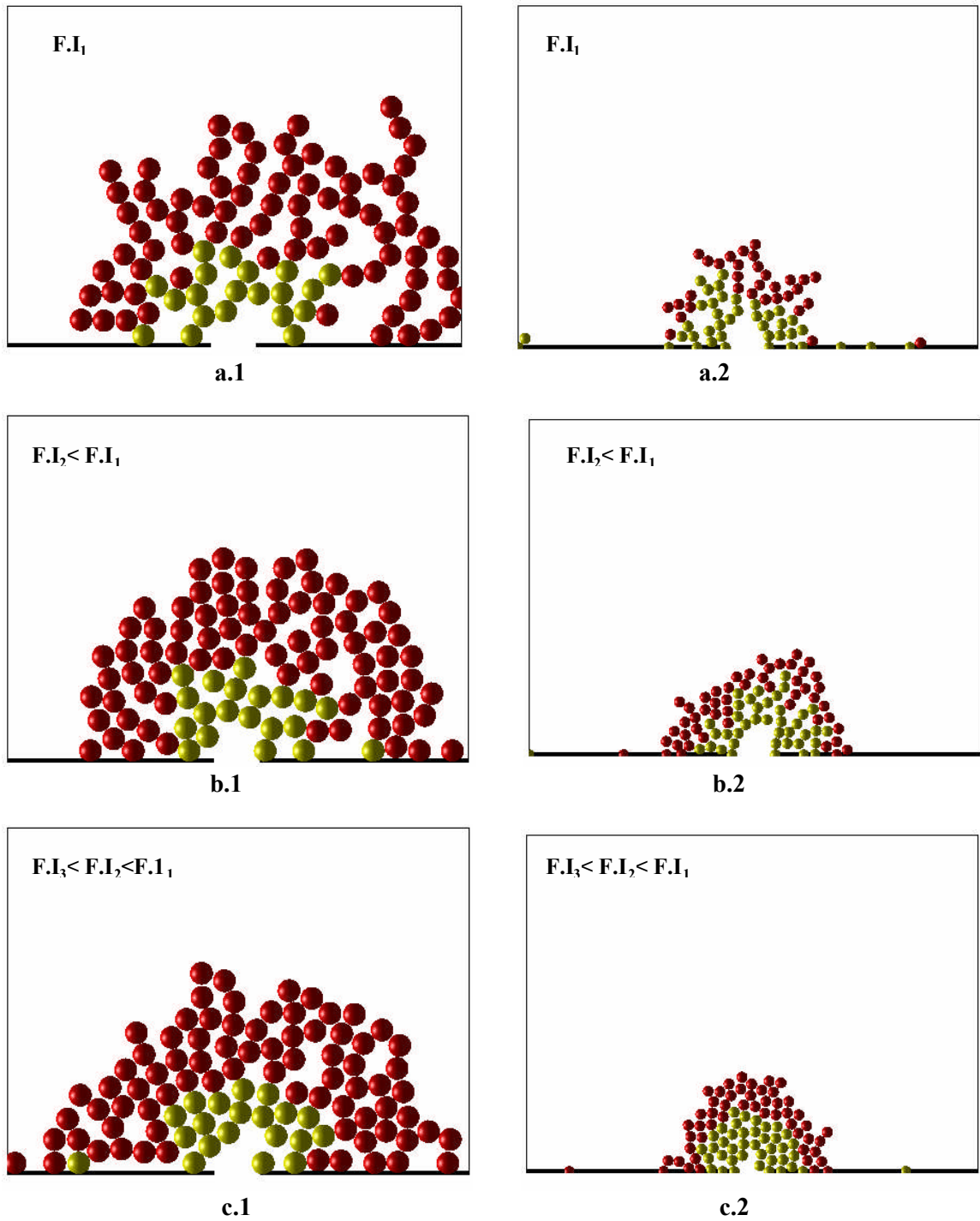


Figure 4.9 Exemples de dépôt de particules : $\Delta P' = 1$, $A' = 10^{-7}$, $r' = d'/4$ à gauche, $r' = d'/8$ à droite

a) $\kappa' = 2000$ pour $r' = d'/4$, $\kappa' = 4000$ pour $r' = d'/8$

b) $\kappa' = 1000$ pour $r' = d'/4$, $\kappa' = 2000$ pour $r' = d'/8$

c) $\kappa' = 300$ pour $r' = d'/4$, $\kappa' = 600$ pour $r' = d'/8$

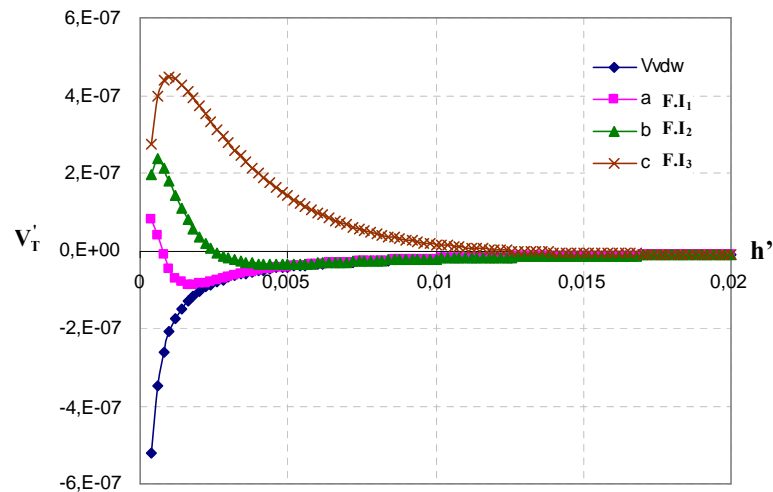


Figure 4.10 potentiel d'interaction en fonction de la distance de séparation h' .
a) $F.I_1$, b) $F.I_2 < F.I_1$, c) $F.I_3 < F.I_2 < F.I_1$

b. La perméabilité

Sur la figure 4.11, nous montrons l'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules injectées. Les courbes d'évolution de la perméabilité sont similaires à celles obtenues lorsque nous avons fait varier la constante de Hamaker. L'allure de la courbe est la même. Toutefois, lorsque la force ionique diminue, cela réduit l'évolution de la perméabilité calculée. En outre, en présence d'une force ionique plus faible la réduction de la perméabilité est moins importante et le milieu est plus poreux. Cette allure de l'évolution de la perméabilité est due au fait que lorsque la force ionique diminue, le potentiel d'interaction répulsif entre les particules augmente et la probabilité d'adhérence sera moins importante à celle en présence d'une force attractive élevée. Cependant, les particules déjà déposées vont repousser les particules en mouvement vers le pore entraînant la formation d'un pont au dessus de ce dernier.

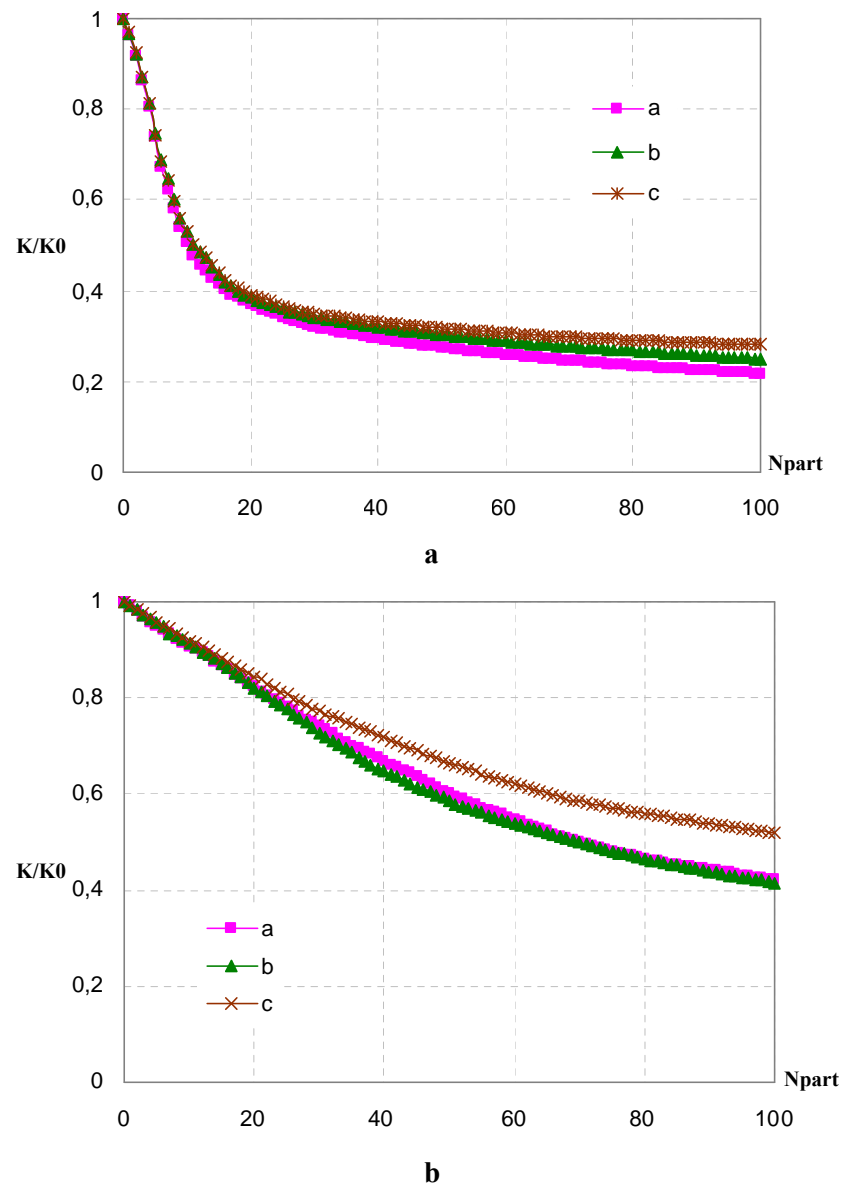


Figure 4.11 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules injectées : influence des effets répulsifs (Voir légende fig.4.10).
a) $r' = d'/4$, b) $r' = d'/8$.

4.3.3 Influence de la pression

Afin de déterminer comment la variation du $\Delta P'$ imposée affecte l'évolution de la perméabilité, et plus précisément comment la variation correspondante à la vitesse de filtration agit sur la formation du dépôt, et donc sur la probabilité de capture des particules, une analyse de l'influence du gradient de pression est discutée à partir de l'évolution de la perméabilité du modèle et de la structure du dépôt obtenu.

Nous avons réalisé l'étude sur quatre valeurs différentes de $\Delta P'$: 1, 10, 100 et 200. La constante de Hamaker est prise égale à 10^{-7} , la force ionique est faible correspond à une longueur réciproque sans dimensions de Debye-Hueckel (κ') prise égale à 1000 pour $r'=d/4$ et à 2000 pour $r'=d/8$. La taille de pore est fixée à 0.1 et deux tailles de particules sont considérées : $r'=d'/4$ et $r'=d'/8$.

a. La morphologie du dépôt

Nous portons sur la figure 4.12, l'effet de la variation du gradient de pression motrice, pour une force ionique faible, sur la structure du dépôt. Nous constatons que l'augmentation du gradient de pression motrice conduit à un nouvel arrangement des particules au sein du dépôt.

La particule atteint une position d'équilibre au contact, la barrière de potentiel étant surmontée par l'augmentation de la force hydrodynamique (équation 2.34). Le dépôt obtenu est dense mais plus étalé sur la paroi lorsque le gradient de pression motrice est faible. Dans cette situation les particules sont en contact.

Il est à noter aussi que pour une taille de particule $r'=d'/4$, la morphologie du dépôt obtenu garde sa même structure au delà de $\Delta P'=100$. En effet, en augmentant le gradient de pression motrice les particules de plus forts diamètres qui se déposent en premier sur le bord du pore, vont contribuer à la création d'un pont de particules plus proche du centre du pore. Ceci va empêcher les autres particules de passer à travers le pore provoquant par la suite un dépôt plus compact du dépôt de particules de tailles plus petites.

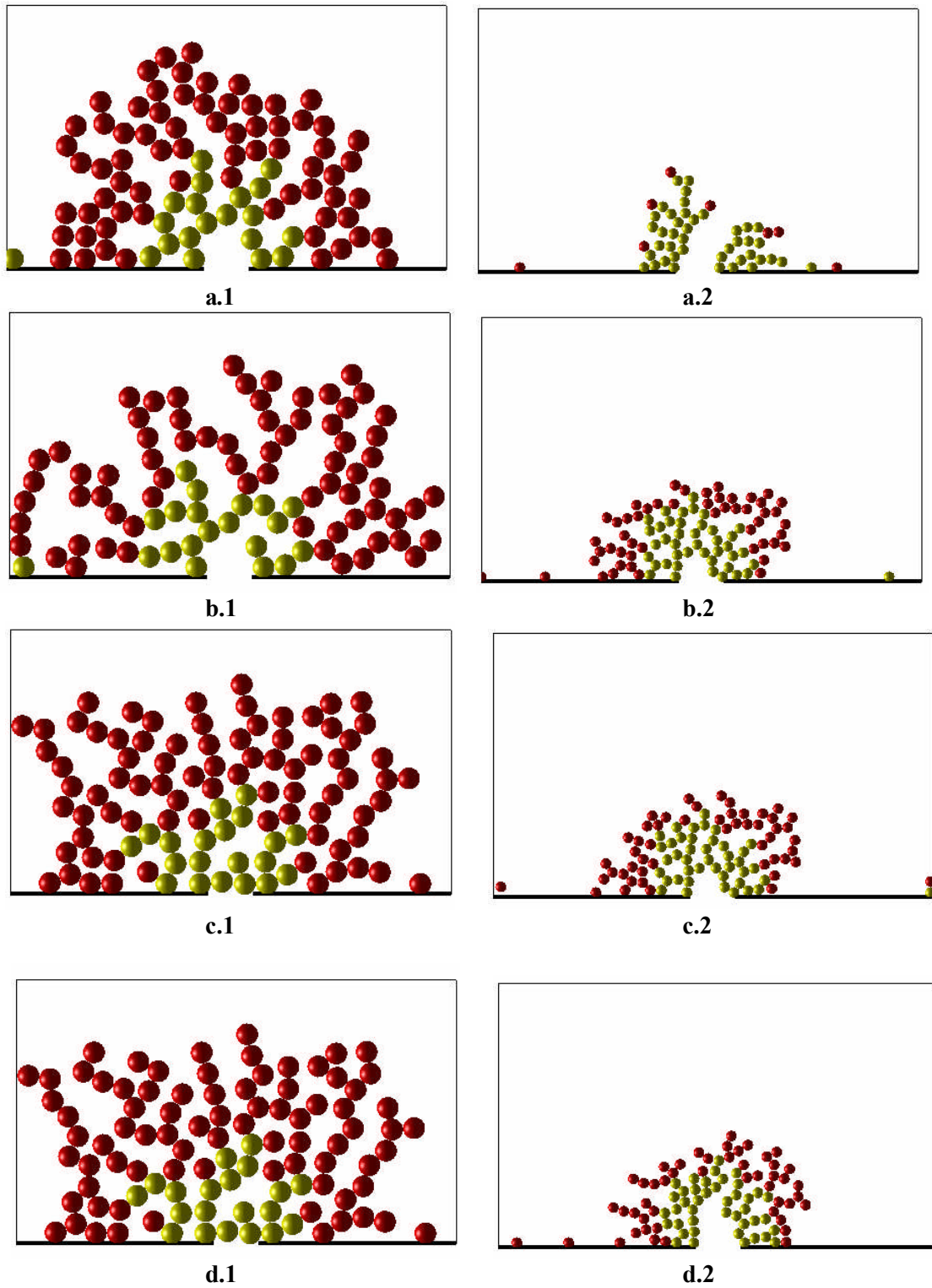


Figure 4.12 Exemples de dépôt de particules : $A' = 10^{-7}$, $\kappa' = 1000$ for $r' = d/4$, $\kappa' = 2000$ for $r' = d/8$, $r' = d'/4$ à gauche, $r' = d'/8$ à droite : a) $\Delta P' = 1$, b) $\Delta P' = 10$, c) $\Delta P' = 100$, d) $\Delta P' = 200$

b. La perméabilité

L'évolution des courbes de perméabilité en fonction du nombre de particules injectées est donnée sur la figure 4.13. Nous constatons que les courbes se superposent, quel que soit le $\Delta P'$ imposé. Le rapport k/k_0 croît lorsqu'on augmente le gradient de pression motrice, à faible force ionique, pour le même nombre de particules injectées. Cela veut dire que la quantité de particules déposées varie selon les différents $\Delta P'$. Ainsi, une diminution du $\Delta P'$ amène un colmatage plus rapide, c'est-à-dire que, pour une même quantité de particules, qui entrent dans le domaine d'étude, celui-ci se colmate d'autant plus vite que le gradient de pression est faible. En effet, au fur et à mesure que la vitesse d'écoulement augmente, la réduction de la perméabilité est moins importante. Etant donnée que la quantité de particules injectée est la même, cela revient à dire qu'il y a eu moins de dépôt. Donc, la probabilité de capture diminue lorsque la vitesse de filtration augmente. Cependant, les courbes de perméabilité exprimées en fonction du nombre de particules injectées se superposent pour les différents gradients de pression imposée. Pour comprendre cela, il faut analyser les conditions hydrodynamiques dans lesquelles les simulations ont été réalisées.

Tout d'abord nous avons supposé dans notre étude que la diffusion est négligeable devant le mouvement convectif. Dans ces conditions, la taille de la zone existante entre la particule et la surface de contact, et dans laquelle la diffusion peut se produire, est beaucoup plus petite que le rayon de la particule. Ainsi, la vitesse de diffusion peut être considérée comme constante dans cette région. Par conséquent, le temps pendant lequel la particule est susceptible d'être capturée est inversement proportionnel à la vitesse de convection de la particule qui tend à l'éloigner de la surface de collision. Donc, la probabilité de capture est inversement proportionnelle à la vitesse.

Toutefois, cette seule explication du phénomène n'est pas suffisante pour justifier que les courbes d'évolution de la perméabilité se superposent quand elles sont exprimées en fonction du nombre de particules injectées. Il est nécessaire aussi, de considérer l'effet important des forces d'interactions entre les particules.

Pour un temps donné, si la vitesse de la particule augmente, sa probabilité de capture diminue. Néanmoins, à concentration constante, le nombre de particules capturées et la structure du dépôt obtenu pour le temps donné sont les mêmes pour les différentes vitesses imposées, ce qui explique pourquoi les courbes de perméabilité se superposent.

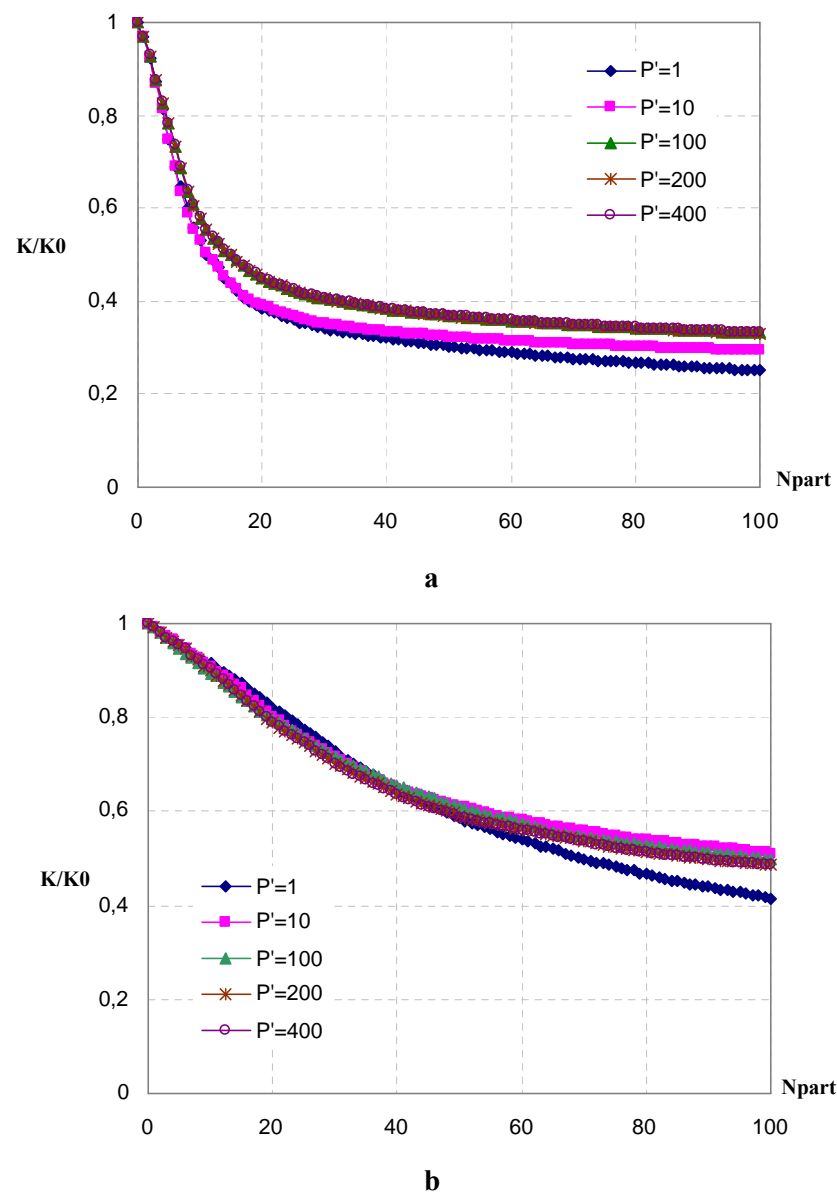


Figure 4.13 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules injectées : influence des effets hydrodynamiques :
a) $r' = d'/4$, b) $r' = d'/8$.

4.3.4 Influence de la taille de la particule

La taille des particules d'une suspension joue un rôle important sur la formation de dépôts au cours des processus de microfiltration. Une étude statistique de la formation de dépôts de particules sphériques sur une surface de filtre modèle est développée, afin de prévoir l'effet de la taille des particules sur la structure du dépôt.

Nous avons interprété les résultats, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts (typiquement 100 dépôts indépendants), en terme de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du volume de particules déposées. Dans ce calcul, 29, 100, 237 particules de diamètres respectivement deux, trois, quatre fois inférieur au pore, arrivant une par une dans le domaine de calcul à partir d'une position initiale amont tirée au hasard sont introduites.

Les résultats que nous avons obtenus nous ont permis d'interpréter les différentes microstructures de dépôt obtenues en faisant varier des paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice.

a. En présence d'une force de Van Der Waals prédominante

Les particules sont soumises à une force ionique élevée et PTM faible.

La figure 4.14 montre l'effet de la taille des particules sur la morphologie du dépôt obtenu. L'approche DLVO (figure 4.15) montre que l'augmentation de la taille de particules provoque la diminution de la longueur réciproque de Debye-Hueckel ce qui correspond à l'augmentation de l'effet attractif dû au potentiel de Van Der Waals. Ainsi, la particule en mouvement adhère à la surface (mur ou particule déjà déposée) dès qu'elle s'en approche.

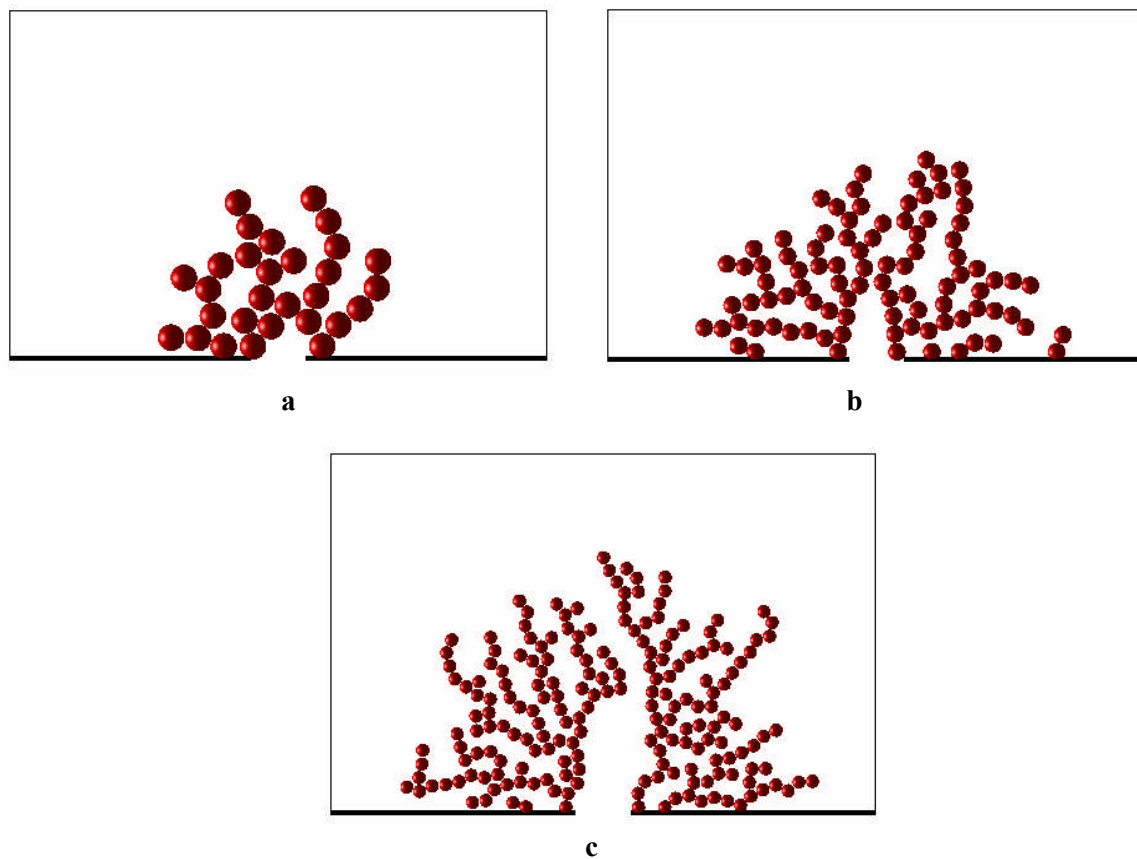


Figure 4.14 Exemples de dépôt de particules : $A'=10^{-7}$, $\Delta P'=1$
 a) $r'=d'/4$ ($N_p=29$, $B'=2.25 \cdot 10^{-10}$, $\kappa'=0.4$)
 b) $r'=d'/6$ ($N_p=100$, $B'=2.25 \cdot 10^{-10}$, $\kappa'=0.6$)
 c) $r'=d'/8$ ($N_p=237$, $B'=2.25 \cdot 10^{-10}$, $\kappa'=0.8$)

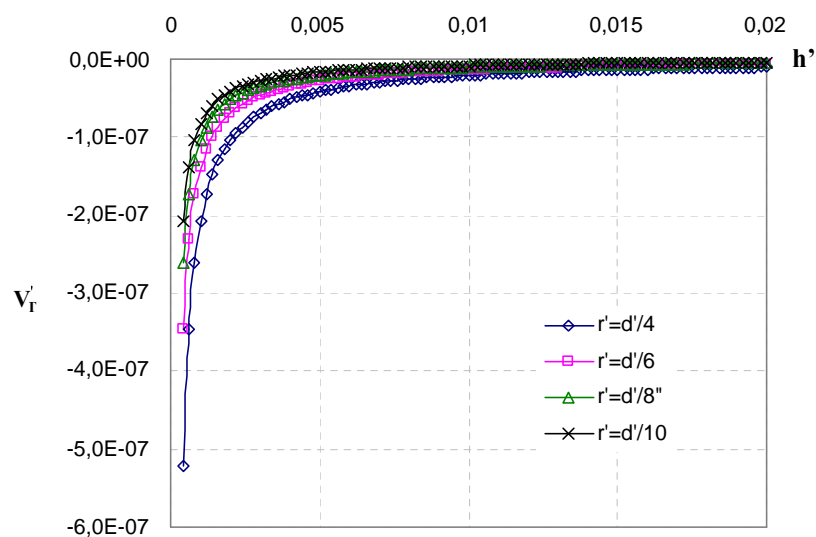


Figure 4.15 potentiel d'interaction en fonction de la distance de séparation h' .

Toutefois, l'augmentation de la taille des particules cause également le bouchage du pore. Par conséquent, l'évolution de la perméabilité est plus importante quand la dimension des particules est faible (figure 4.16).

En outre, en étudiant l'effet de la taille de la particule sur l'évolution de la perméabilité en fonction du volume de particules déposées, nous constatons selon la figure 4.16, dans un premier temps, un écart observable au début de l'évolution entre la particule de taille $r'=d'/4$ et les autres tailles de particules. Ensuite les courbes d'évolution de k/k_0 , de trois tailles différentes, se superposent à partir d'un certain volume de particules déposées. Cet écart est dû au fait, pour un même volume de particules déposées, que nous n'avons pas le même nombre d'où une chute de perméabilité plus importante. La superposition des courbes s'explique par le fait qu'à partir d'un volume de particules déposées, le système entre dans un état stable où à ce moment, les particules se déposent jusqu'à atteindre un état stationnaire pour lequel les particules ne peuvent plus se déposer sous l'effet de la vitesse de cisaillement.

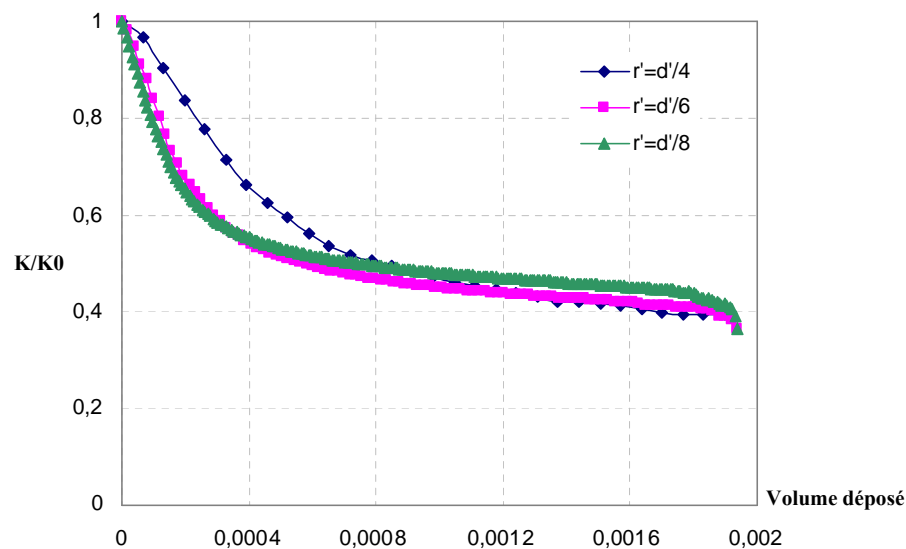


Figure 4.16 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du volume de particules déposées : influence des effets attractifs.

b. En présence d'une force répulsive de type double couche prédominante

La figure 4.17 illustre, sur trois réalisations, l'effet de la taille de particules sur la morphologie du dépôt obtenu en présence d'une force ionique faible et une pression transmembranaire faible. La présence d'un potentiel d'interaction électrostatique répulsif significatif entraîne la compétition entre l'ensemble des forces qui apparaissent dans

l'équation (2.34) se traduisant par un dépôt plus dense ; toutefois les particules ne sont plus en contact. On constate d'une manière générale que les particules ont tendance à s'accumuler près du pore. Comme cela a été montré par Tung et al. (2002), lorsque la vitesse de filtration est faible, les particules lorsqu'elles sont plus petites que le pore, forment un pont au dessus de ce dernier. Notre modèle rend bien compte du pontage formé par les particules au niveau du pore lorsque celles ci sont très petites devant le pore (cas où $r'=d'/6$ et $r'=d'/8$).

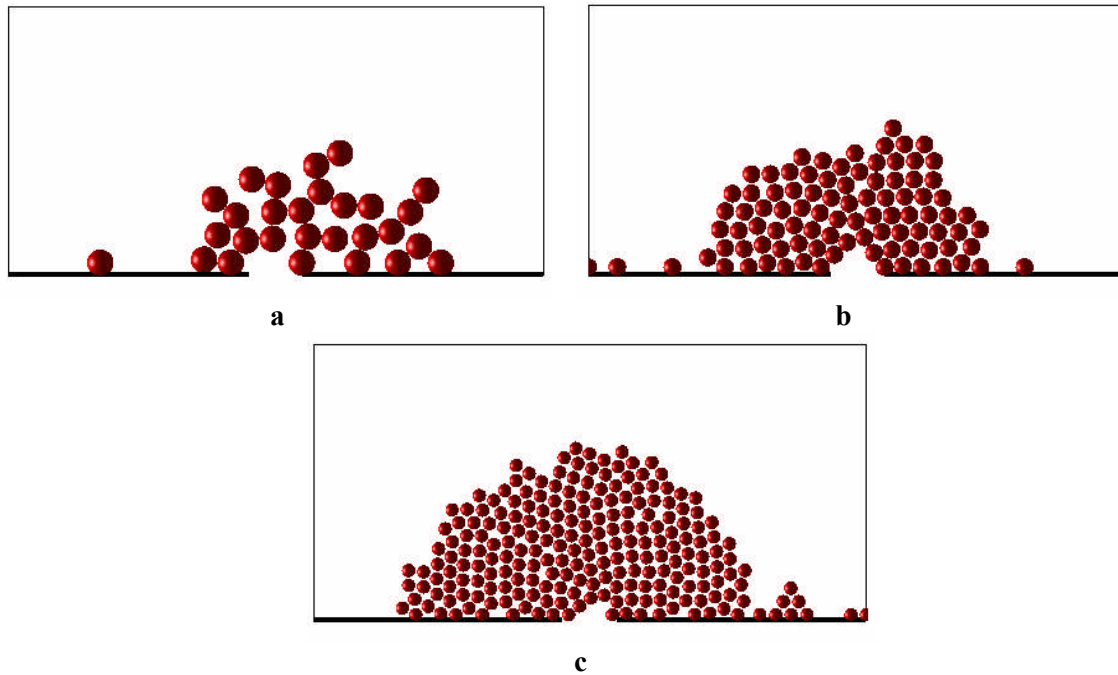


Figure 4.17 Exemples de dépôt de particules : $A'=10^{-7}$, $\Delta P'=1$
a) $r'=d'/4$ ($N_p=29$, $B'=1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa'=1023$)
b) $r'=d'/6$ ($N_p=100$, $B'=1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa'=1535$)
c) $r'=d'/8$ ($N_p=237$, $B'=1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa'=2046$)

Sur la figure 4.18, nous montrons l'effet de la taille de la particule sur l'évolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du volume de particules déposées lorsqu'on fait diminuer la force ionique. Les courbes d'évolution de la perméabilité sont similaires à celles obtenues en présence d'une force ionique forte. L'allure de la courbe est la même, mais un écart important entre les courbes pour les différentes tailles de particules est observable. Cette allure de l'évolution est due au fait que, le nombre de particules déposées pour un même volume de particules déposées, est plus important pour une taille de particules faibles. En plus la présence d'une force ionique faible entraine la formation d'un dépôt dense. Pour ces deux raisons, en présence d'une force ionique faible, la diminution de la taille de particule réduit l'évolution de la perméabilité.

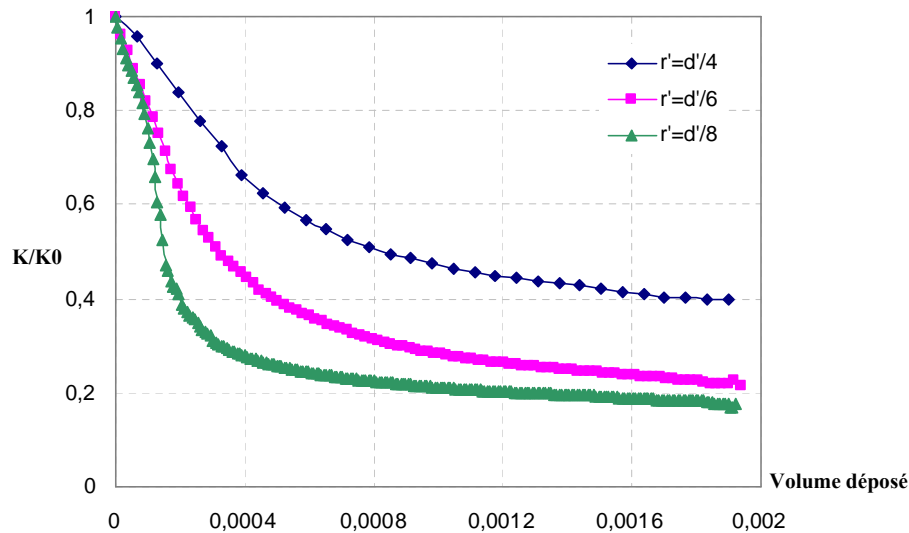


Figure 4.18 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du volume de particules déposées : influence des effets répulsifs.

c. En présence d'un gradient de pression motrice élevé

L'augmentation du gradient de pression motrice, pour une force ionique faible, surmonte la barrière de potentiel par l'augmentation de la force de traînée. Le dépôt obtenu est dense mais plus étalé sur la paroi que lorsque le gradient de pression motrice est plus faible. En effet dans ce cas, la vitesse de filtration demeure faible, traduisant le comportement rampant de l'écoulement, et conduisant à la formation du pont au niveau du pore de la paroi par les petites particules (figure 4.19).

Les courbes d'évolution de la perméabilité du système en fonction du volume de particules déposées (figure 4.20) montrent que, pour un même volume de matière injecté, les premières particules ont tendance de s'accumuler près du pore, le dépôt obtenu est assez dense mais plus étalé sur la paroi (figure 4.19).

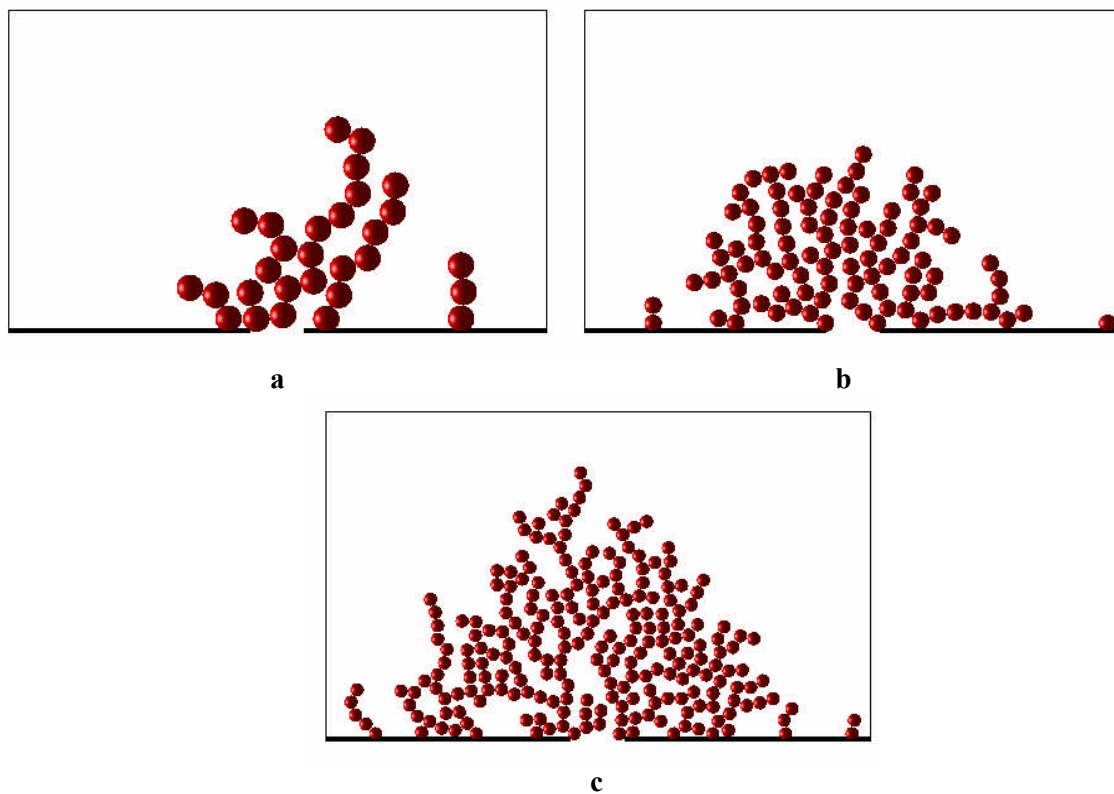


Figure 4.19 Exemples de dépôt de particules : $A' = 10^{-7}$, $\Delta P' = 100$
 a) $r' = d'/4$ ($N_p = 29$, $B' = 1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa' = 1023$)
 b) $r' = d'/6$ ($N_p = 100$, $B' = 1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa' = 1535$)
 c) $r' = d'/8$ ($N_p = 237$, $B' = 1.076 \cdot 10^{-6}$, $\kappa' = 2046$)

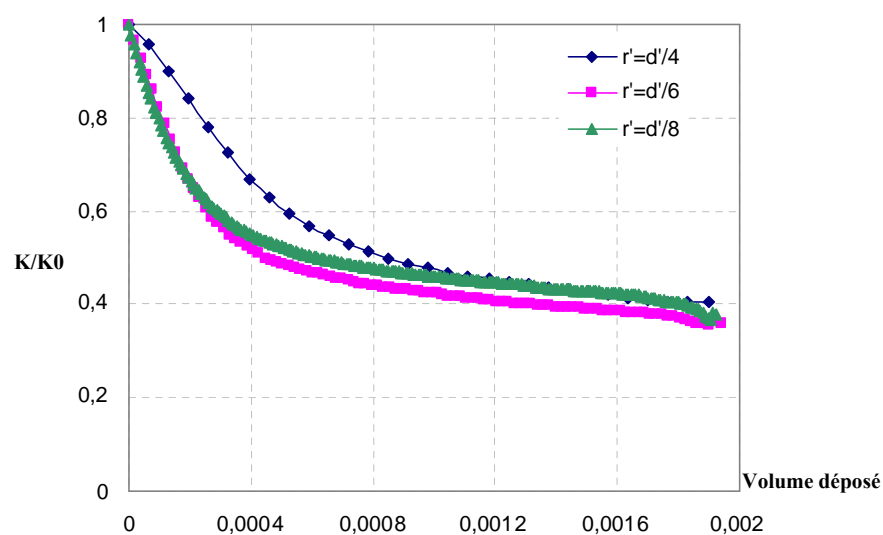


Figure 4.20 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du volume de particules déposées : influence des effets hydrodynamiques.

d. Efficacité de filtration

L'un des paramètres essentiels à quantifier pour un filtre est l'efficacité de capture. Elle est définie de la manière suivante :

$$\varphi = \frac{N_{pc}}{N_{pc} + N_{pp}}$$

N_{pc} : nombre de particules capturées

N_{pp} : nombre de particules non capturées

On se fixe une taille de pore de $d' = 0.1$ (correspondant à une porosité de 10%). On étudie la variation de cette efficacité en fonction de la taille de particules. Les tailles retenues sont $r' = d'/4, d'/6, d'/8, d'/10$. On fixe le nombre de particules que l'on va lancer en haut du domaine à $N_p = 100$. On procède à 100 tirages aléatoires de particules en haut du domaine afin d'évaluer qualitativement la dispersion statistique de la courbe d'efficacité en fonction du rapport $2r'/d'$ représentée sur la figure 4.21.

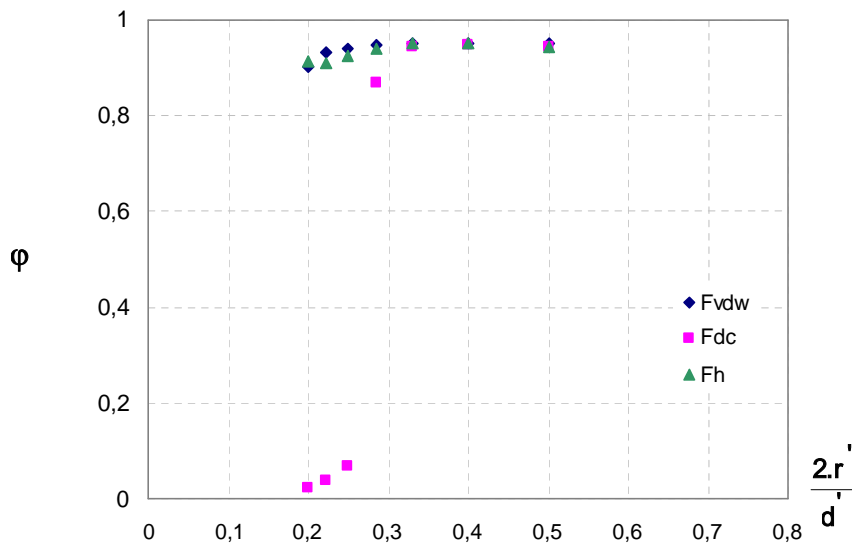


Figure 4.21 Variation de l'efficacité de capture

On constate dans le cadre du modèle proposé, que l'efficacité est supérieure à 80% lorsque le diamètre de la particule est supérieur à 1/2 de la taille du pore, dans les cas d'une force attractive dominante et pour une pression transmembranaire élevée. En présence d'une force répulsive de double couche élevée, l'efficacité est supérieure à 80% lorsque la taille de la particule est supérieure à 1/3 de la taille du pore, et inférieure à 20% lorsque la taille de la particule est inférieure à 1/4 de la taille du pore.

Pour expliquer le phénomène de la formation du dépôt de particules en présence de la force de double couche, nous avons déterminé l'efficacité de capture pour chaque réalisation en fonction de la taille de particules.

La figure 4.22 montre que pour une taille de particule égale à celle de la taille du pore (fig. 4.22a), la courbe de variation du pourcentage de réalisations en fonction de l'efficacité est croissante. Elle varie entre 0.9 et 1, dont 43% de réalisations ont une efficacité de capture de l'ordre de 1.

En diminuant la taille de la particule (fig.4.22b), l'effet répulsif augmente le pourcentage du passage de la particule à travers le pore, ce qui entraîne une diminution de l'efficacité de capture qui varie alors entre 0.5 et 1 pour une réalisation statistique de 100 dépôts.

Sur les figures 4.22c et 4.22d, nous montrons l'effet des particules de petites tailles sur l'évolution du pourcentage de réalisation en fonction de l'efficacité de capture. Il est à noter que la plupart des réalisations ont une faible efficacité comprise entre 0.01 et 0.1. Néanmoins, nous notons pour $r'/d' = 8$, la présence de dépôt ayant une efficacité de capture égale à 1. En effet, lorsque la vitesse de filtration est faible, les particules qui ont des tailles plus petites que le pore, forment un pont au dessus de ce dernier et empêchent les autres particules de traverser le pore. En plus, la présence d'un potentiel d'interaction électrostatique répulsif significatif entraîne la formation d'un dépôt plus dense mais les particules ne sont plus en contact. Pour ces deux raisons, l'efficacité de capture tend vers 1.

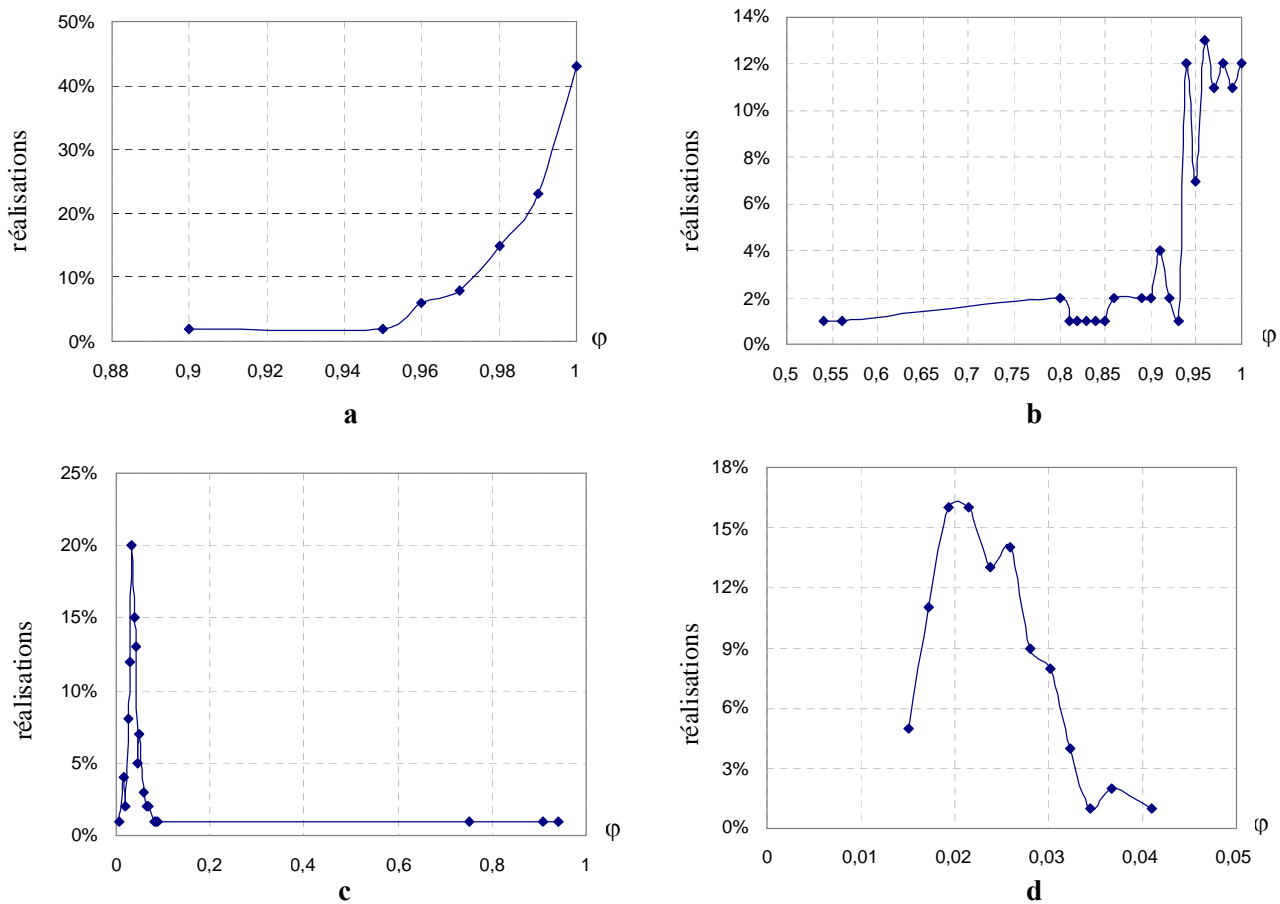


Figure 4.22 Variation du pourcentage de réalisations en fonction de l'efficacité en présence de la force de double couche : a) $r'/d'=4$, b) $r'/d'=6$, c) $r'/d'=8$, d) $r'/d'=10$.

4.4 Conclusion

Une simulation dynamique de la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle est présentée. La surface filtrante est constituée de pores circulaires régulièrement répartis suivant un arrangement carré. Pour simplifier, l'étude est réalisée sur un domaine constitué d'un élément unitaire représentatif de cette surface, muni de conditions aux limites périodiques. De plus, dans une première approche quasi bidimensionnelle, le domaine est restreint à une cellule Hele-Shaw dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule, de telle sorte que le modèle de Darcy s'applique sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale aléatoirement choisie et décrivent des trajectoires qui tiennent compte de la structure de l'écoulement et des interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées. L'écoulement de Darcy dans le domaine complet est recalculé une fois la particule déposée, sur un champ de

perméabilité variable comprenant une région fluide de type Hele-Shaw et une région poreuse correspondant au dépôt.

En premier lieu, différentes microstructures de dépôt sont obtenues en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice. Les résultats sont interprétés quantitativement, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts, en terme de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées.

L'influence de la force ionique élevée sur le phénomène est marquée par l'évolution de la perméabilité selon les différentes valeurs de la constante de Hamaker. Lorsque nous avons tracé les courbes d'évolution en fonction de la perméabilité en fonction du nombre de particules injectées, nous avons observé qu'une augmentation de la constante de Hamaker implique une augmentation de l'effet attractif provoquant par la suite une structure du dépôt très ouverte d'où un milieu très poreux.

Lorsque nous changeons l'environnement ionique, les résultats montrent qu'une diminution de la force ionique implique une réduction de l'évolution de la perméabilité observable. La diminution de la force ionique agit directement sur l'épaisseur de la double couche, en l'augmentant. De ce fait, le potentiel répulsif entre particule/milieu poreux et particule/particule devient défavorable. Cette condition a fait apparaître des dépôts de particules se traduisant par un agencement plus compact de particules. Les dépôts dans ce cas sont plus denses mais les particules ne sont pas en contact.

Finalement, l'augmentation du gradient de pression motrice, pour une force ionique faible, conduit à un nouvel arrangement des particules au sein du dépôt. La particule atteint une position d'équilibre au contact, la barrière de potentiel étant surmontée par l'augmentation de la force de traînée. Le dépôt obtenu est dense mais plus étalé sur la paroi que lorsque le gradient de pression motrice est plus faible. Dans cette situation les particules sont en contact.

En deuxième lieu afin de prévoir l'effet de la taille des particules sur la structure du dépôt, nous avons développé une étude statistique de la formation de dépôts de particules sphériques sur une surface de filtre modèle en utilisant différents rapports entre la taille des particules et celle du pore de la paroi. Les résultats obtenus nous ont permis d'interpréter les différentes microstructures de dépôt obtenues, ainsi que la distribution spatiale des particules, en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice.

Bibliographie

- Ben Hassan, I., *Microfiltration de différents types de laits et effet de la matière grasse*, Mastère à l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax-Tunisie, 2006.
- Bratberg, I., Radjai, F., Hansen, A., *Dynamic rearrangements and packing regimes in randomly deposited two-dimensional granular beds*, HEP/123-qed, 2003.
- Chang, J.S, Tsai, L.J, Vigneswaran, S., *Experimental investigation of the effect of particle size distribution of suspended particles on microfiltration*, Wat. Sci. Tech, 34, 133-140, 1996.
- Fu, L.F., Dempsey, B.A., *Modeling the effect of particle size and charge on the structure of the filter cake in ultrafiltration*, Journal of Membrane Science, 149, 221-240, 1998.
- Gruesbeck, C., Collins, R.E., *Entrainment and deposition of fine particles in porous media*, Society of Petroleum Engineers Journal, 22, 847-856, 1982.
- Hong, S., Elimelech, M., *Chemical and physical aspects of natural organic matter (NOM) fouling of nanofiltration membranes*, Journal of Membrane Science, 132, 159-181, 1997.
- Hwang K.J., Wang Y.S., *Numerical simulation of particle deposition in cross-flow microfiltration of binary particles*, Journal of Science and Engineering, 2, 119-125, 2001.
- Israelachvili, J., *Intermolecular and surface forces*, Academic Press, 1985.
- Kromkamp, J., Faber, F., Schroen, K., Boom, R., *Effects of particle size segregation on crossflow microfiltration performance: Control mechanism for concentration polarisation and particle fractionation*, Journal of Membrane Science, 268, 189-197, 2006.
- Noël F., *Simulation directe de la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse, application à la filtration d'arrêt*, Thèse de Doctorat de l'I.N.P.Toulouse, 2006.
- Pinheiro, I.G., *Transport et dépôt de particules en milieux poreux : de l'échelle du pore à l'échelle macroscopique*, Thèse de doctorat de l'institut National Polytechnique de Toulouse, 1996.
- Rodier, E., Leclerc, D., Dodds, J.A., *The filtration of model colloids in beds of spheres*, in 6th World Filtration Congress, Nagoya, 232-235, 1993.
- Salehi N., *Mécanismes de rétention hydrodynamique de suspensions colloïdales en milieu poreux modèles*, thèse de doctorat de l'université de Paris-Sud, 1996.

Schmitz, P., Wandelt, B., Houi, D., Hildenbrand, M., *Description of particle aggregation at the membrane surface in crossflow microfiltration*, Journal of Membrane Science, 84, 171-183, 1993.

Tobiason, J.E., O'Melia, C.R., *Physicochemical aspects of particle removal in depth filtration*, Journal AWWA, 80, 54-64, 1988.

Tung, K. L., Chuang, C. J., *Effect of pore morphology on fluid flow and particle deposition on track-etched polycarbonate membrane*, Desalination, 146, 129-134, 2002.

Vaidyanathan R., Tien C., *Hydrosol deposition in granular beds: an experimental study*, Chem. Eng. Comm., 81, 123-144, 1989.

Chapitre 5. SENSIBILITE DU PROBLEME

5.1 Introduction

A faible force ionique, l'augmentation du gradient de pression motrice accroît la perméabilité du système. En effet, ces conditions conduisent à l'obtention d'un dépôt uniforme, c'est à dire moins localisé au dessus du pore. A force ionique élevée, le dépôt obtenu est très poreux et la perméabilité reste élevée.

La perméabilité du dépôt formé sur la surface de la membrane est donc un paramètre essentiel pour maintenir ou augmenter l'efficacité du processus. Elle dépend fortement de la porosité du dépôt ou de la distribution locale de la porosité aussi bien que de la taille et la forme des particules.

Le problème s'orient vers l'étude de l'effet des divers paramètres provoquant des variations à l'échelle microscopique ainsi qu'à l'échelle macroscopique. Ainsi, on va s'intéresser, en premier lieu, à l'analyse de la sensibilité de la perméabilité en étudiant l'effet des paramètres du modèle sur la variation de la porosité moyenne. Ensuite, on étudiera l'évolution de la perte de charge sera déterminée dans une cellule de Hele-Shaw à débit imposé.

5.2 Sensibilité du domaine à pression imposée

Dans cette partie on va étudier en premier lieu l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la porosité moyenne du dépôt et ensuite, l'effet de la taille de la particule sur cette porosité. Dans les deux cas, la porosité de la paroi est prise égale à 10%.

Afin d'étudier la porosité moyenne du dépôt, nous avons déterminé la porosité bidimensionnelle locale calculée tout le long du dépôt en effectuant une discrétisation du domaine en éléments de volume limités par les mailles de perméabilité occupées par les particules (figure 5.1). Sachant que la maille de perméabilité est prise égale à la taille de la particule.

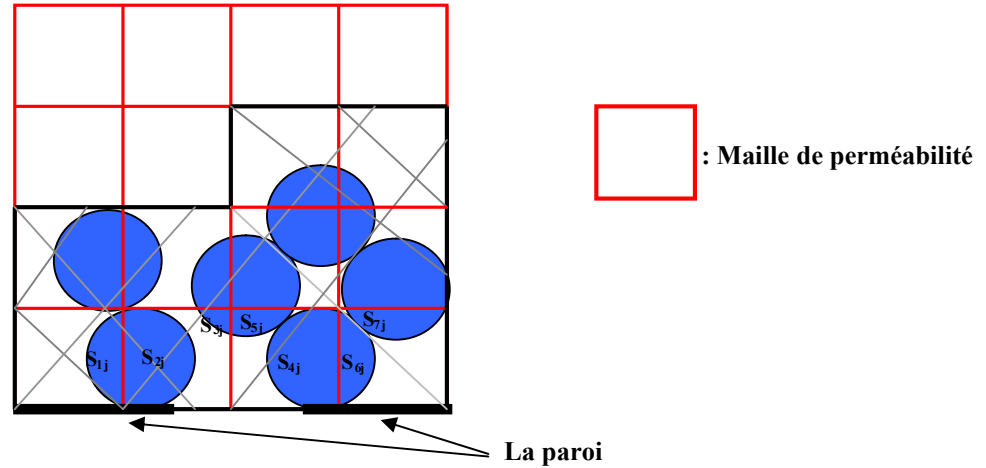


Figure 5.1 Calcul de la porosité locale dans le domaine hachuré pour le dépôt j

On détermine la contribution surfacique S_{ij} de chacune des particules i situées en totalité ou en partie dans chaque maille de perméabilité s'apparentant à l'élément de volume considéré. On obtient l'expression suivante de la porosité locale ε_{d_j} suivante :

$$\varepsilon_{d_j} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{N_j} S_{ij}}{\Delta x \Delta y} \quad (5.1)$$

avec N_j : nombre de cellules du maillage de perméabilité dans l'élément de volume considéré pour le dépôt j

Δx : Pas de cellules du maillage de perméabilité selon l'axe des x

Δy : Pas de cellules du maillage de perméabilité selon l'axe des y

La porosité globale ou moyenne du dépôt ε_{moy} est donc la moyenne spatiale de ces porosités locales, elle s'écrit :

$$\varepsilon_{moy} = \frac{1}{N_{dépôt}} \sum_{j=1}^{N_{dépôt}} \varepsilon_{d_j} \quad (5.2)$$

5.2.1 Effets des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques

La variation de la porosité moyenne du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées, est évaluée en se basant sur une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts (typiquement 100 dépôts indépendants), effectuée en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression

motrice. Chaque simulation correspond à 100 particules arrivant une par une dans le domaine de calcul.

La figure 5.2 montre l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la porosité moyenne du dépôt. La présence d'une force attractive dominante de type Van Der Waals conduit à une porosité moyenne élevée variant entre 0.664 et 0.747 résultant de la structure dendritique du dépôt (voir chapitre précédent).

Lorsqu'on réduit la force ionique, le potentiel d'interaction électrostatique répulsif devient significatif et à plus longue portée, ce qui conduit à un dépôt dense où la chute de la perméabilité est remarquable. La porosité est donc plus faible variant entre 0.616 et 0.654.

Pour le même nombre de particules déposées, lorsqu'on augmente le gradient de pression motrice tout en gardant une force ionique faible, la porosité augmente. Dans ce cas, la porosité est comprise entre 0.622 et 0.679.

Pour les 3 cas étudiés, nous constatons que la porosité moyenne varie légèrement au cours de la formation du dépôt. Cette variation est due à la position aléatoire des particules, ce qui conduit à la variation de la porosité locale.

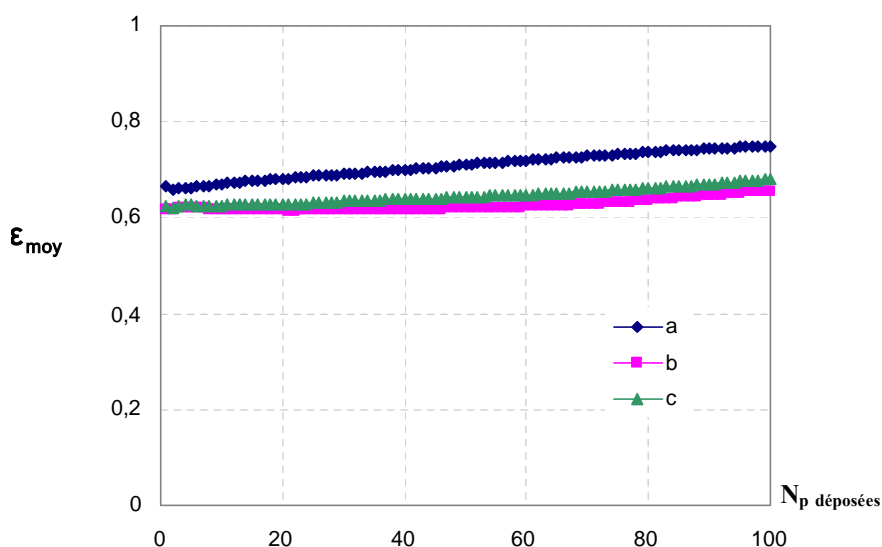


Figure 5.2 Porosité moyenne du dépôt en fonction du nombre de particules déposées pour différents cas étudiés : a) effets attractifs, b) effets répulsifs, c) effets hydrodynamiques

Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés dans le chapitre précédant. En effet, l'étude, dans les mêmes conditions, de la sensibilité du problème à la distribution de la pression et de la perméabilité au cours de la formation du dépôt de particules est représenté à la figure 5.3. Les 6 illustrations résument l'effet des paramètres du modèle sur la distribution de la perte de charge et de la perméabilité dans le domaine d'étude. En présence d'une force

attractive dominante de type de Van der Waals, la perte de charge et/ou perméabilité est répartie dans tout le domaine (figure 5.3a). En effet, en augmentant la force ionique, la particule en mouvement adhère à la surface (paroi ou particule déjà déposée) dès qu'elle s'en approche, ce qui se traduit par une structure de dépôt dendritique, très ouverte.

Lorsqu'on diminue la force ionique, le potentiel d'interaction électrostatique répulsif devient significatif et à plus longue portée (par augmentation de la longueur réciproque de Debye), ce qui empêche la particule d'adhérer. La compétition entre l'ensemble des forces qui apparaissent dans l'équation (2.24) se traduit par un agencement plus compact des particules. Le dépôt devient ainsi dense mais les particules ne sont plus en contact. La perte de charge et/ou perméabilité est localisée alors au niveau du pore (figure 5.3.b). On remarque également que l'augmentation du gradient de pression motrice, pour une force ionique faible, conduit à une nouvelle distribution de la perte de charge et/ou perméabilité (figure 5.3c). La particule atteint alors une position d'équilibre au contact. La barrière de potentiel est ainsi surmontée par l'augmentation de la force de traînée. Dans ce cas, le dépôt obtenu est dense mais plus étalé sur la paroi, ce qui se traduit par une localisation de la perte de charge et/ou perméabilité au niveau de la paroi. Dans cette situation les particules sont en contact.

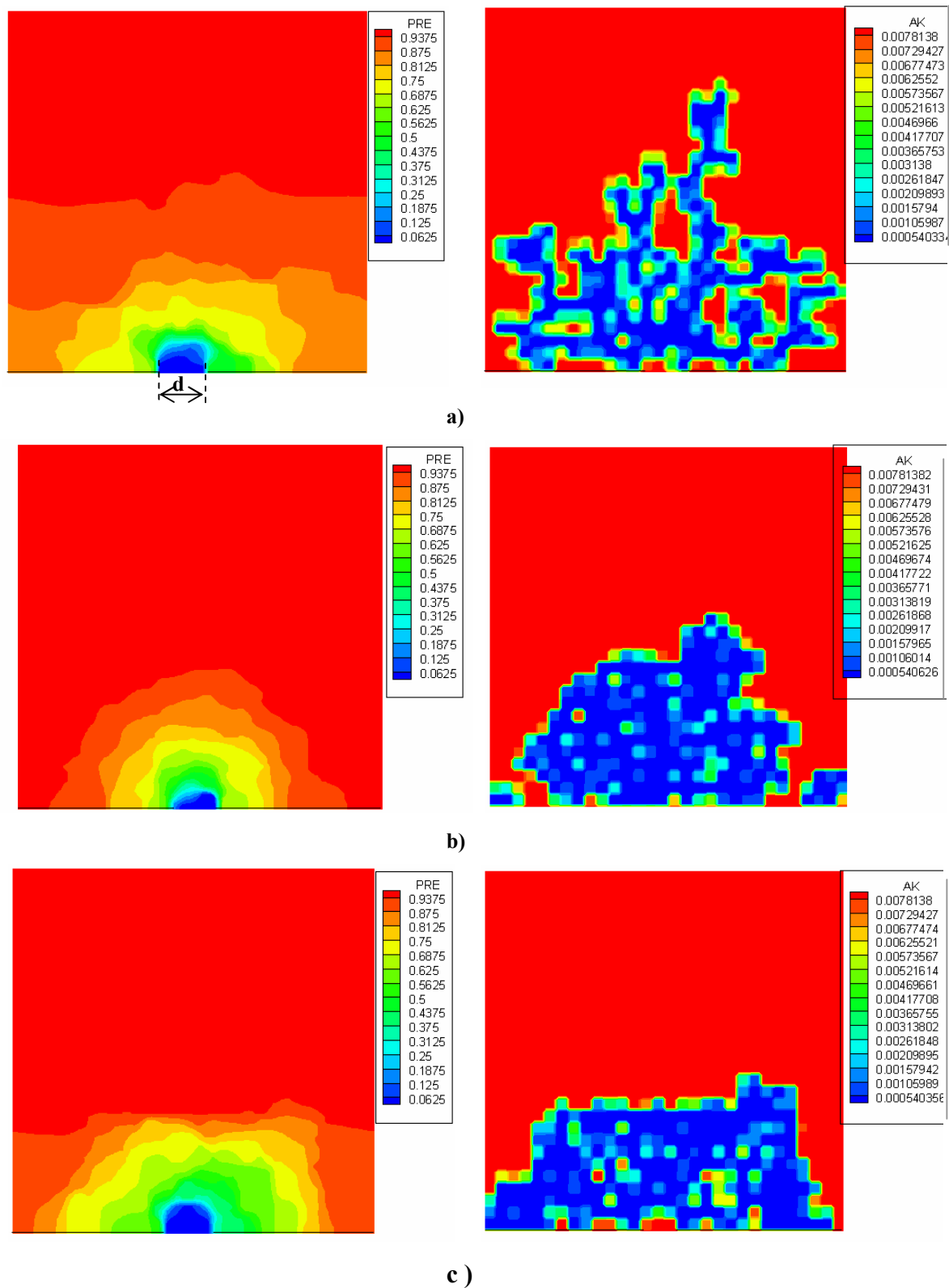


Figure 5.3 Distribution de la pression (à gauche), de la perméabilité (à droite) au cours de la formation du dépôt de particules. Influence des effets : a) attractifs, b) répulsifs, c) hydrodynamiques

Selon la figure 5.2, nous constatons aussi que quelque soit le paramètre du modèle appliqué et pour une taille de particule fixée, la porosité moyenne d'un dépôt de structure hétérogène est plus élevée que celle d'un dépôt de structure homogène qui est par exemple comprise entre 0.259 dans le cas d'un dépôt hexagonal et 0.477 pour un dépôt cubique simple. Nous avons donc comparé la variation de la perméabilité en fonction du nombre de particules déposées pour un dépôt hétérogène soumis à la force D.L.V.O ayant une porosité moyenne égale à 0.532 et pour deux dépôts de structures homogènes : cubique et hexagonale de porosités respectives 0.477 et 0.259. Le nombre de particules injectées pour les trois cas étudiés est fixé à 100 et la taille de la particule est prise deux fois plus petite que la taille du pore (figure 5.4).

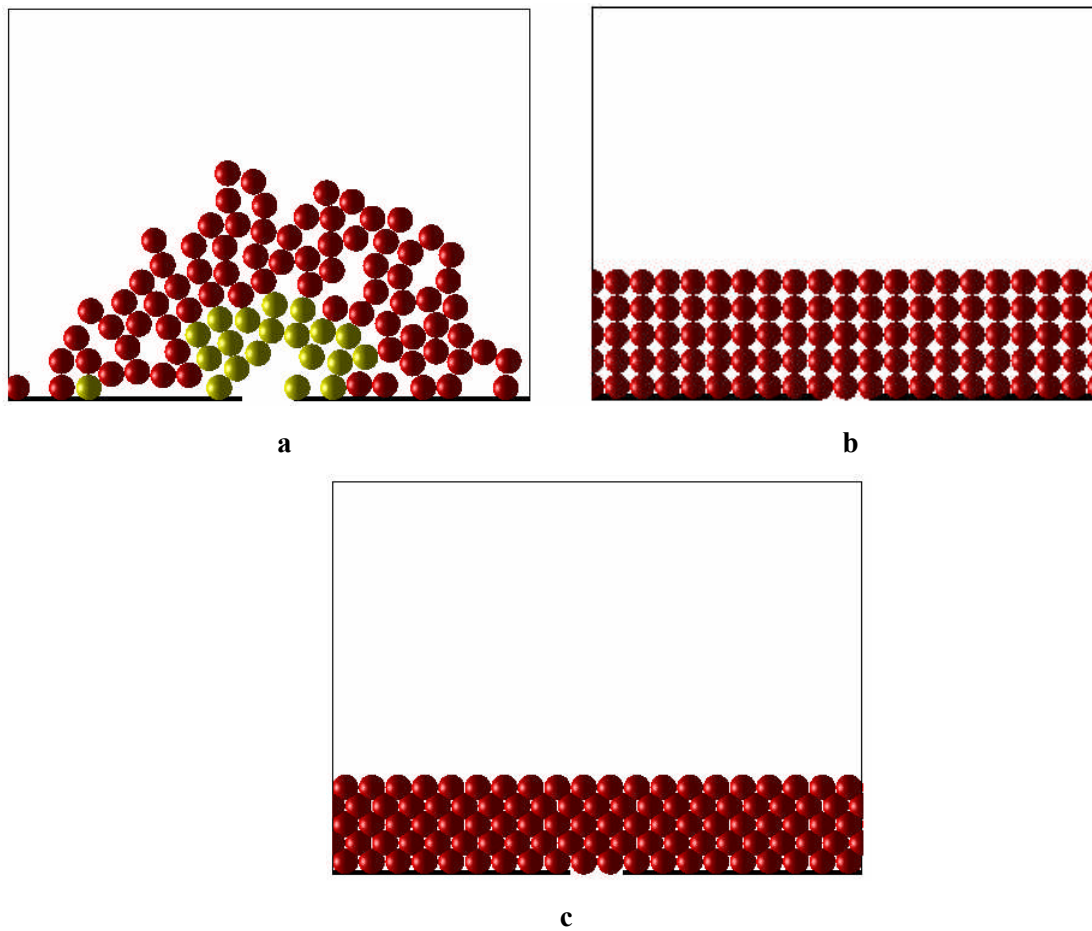


Figure 5.4 Géométrie du dépôt de particules $r'=d'/4$, $N_p=100$: a) dépôt hétérogène : $\varepsilon = 0.532$, b) dépôt homogène cubique : $\varepsilon = 0.477$, c) dépôt homogène hexagonal : $\varepsilon = 0.259$

Sur la figure 5.5, nous montrons l'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules déposées. L'allure de la courbe est la même, mais nous observons qu'il existe un écart important entre les courbes où il existe une réduction de seuil final observé. En effet, la réduction de perméabilité d'un dépôt homogène de porosité 0.259 est plus brutale et tend plus

rapidement vers zéro que dans les autres cas. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que dans le cas d'un dépôt homogène à l'échelle microscopique, la paroi est considérée comme un milieu continu équivalent qui ne tient pas compte de la modification de l'écoulement par les pores de la paroi dont la présence augmentent la résistance hydraulique par l'allongement des lignes de courant.

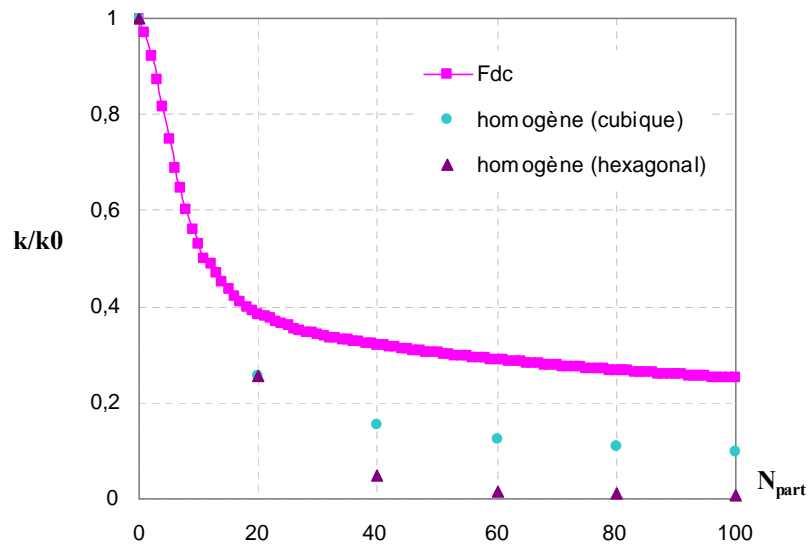


Figure 5.5 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées.

Etant donné la structure complexe d'un dépôt hétérogène, il est difficile de traiter le phénomène réel de la filtration, une simplification est donc nécessaire. La plupart des études ont traité le phénomène de filtration sans tenir compte de l'existence des pores, d'où le cas d'un dépôt homogène dont la paroi tend rapidement à se colmater. Un des réseaux les plus simples qui puisse présenter la structure homogène d'un dépôt est le réseau cubique simple qui est composé de grains sphériques régulièrement rangés. Mais, d'après l'évolution de la perméabilité du système en fonction du nombre de particules déposées (figure 5.5) et pour être plus proche de la réalité, il est nécessaire de choisir un réseau homogène de porosité supérieure à celle d'un réseau cubique simple de telle sorte que l'évolution de sa perméabilité coïncide avec celle du dépôt hétérogène obtenu par le modèle.

Selon la figure 5.4, la porosité $\varepsilon = 0.476$ d'un dépôt homogène cubique simple de 100 particules est le résultat de la composition de 20 particules par couche. Dans cet empilement cubique simple, la distance entre le centre de deux particules est égale à $a (=2.r)$ la longueur de la maille élémentaire avec r le rayon de la particule. Dans ce cas les particules sont en collisions les unes avec les autres. Pour augmenter la porosité, il suffit d'augmenter le volume

vide c'est-à-dire de décaler les particules les unes des autres (figure 5.6), de telle sorte la porosité définie comme suit. Soit :

$$\varepsilon = \frac{\text{volume vide}}{\text{volume total}} = 1 - \frac{\text{volume occupé}}{\text{volume total}}$$

Avec

$$\text{Volume occupé (hachuré)} = \frac{4}{3}\pi r^3 / 8$$

$$\text{Volume total} = r \cdot \left(r + \frac{1}{2}\right)^2$$

Où r : rayon de la particule.

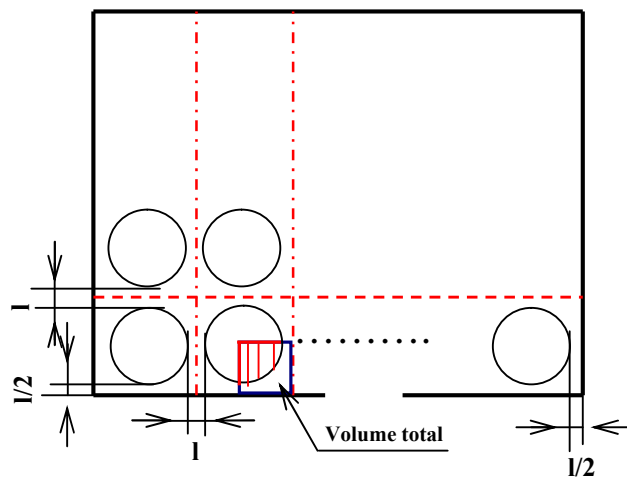


Figure 5.6 Détermination de la porosité d'un dépôt de structure homogène.

Sur la figure 5.7, nous avons présenté les différentes étapes permettant d'augmenter la porosité d'un dépôt. L'empilement désordonné est d'abord ramené à un empilement ordonné cubique simple obtenu à partir d'un dépôt de 100 particules. Ensuite, dans chaque étape, on augmente la longueur de la maille élémentaire pour accroître la porosité du dépôt par l'augmentation du volume vide. Le nombre de particules par couche sera donc diminué (voir sens de porosité dans la figure 5.7). Cette méthode nous amène à obtenir une dernière couche incomplète. Pour cette raison afin d'avoir un dépôt homogène, nous avons complété le remplissage de la dernière couche de telle sorte dans certain cas on obtient un dépôt de particules composé de plus de 100.

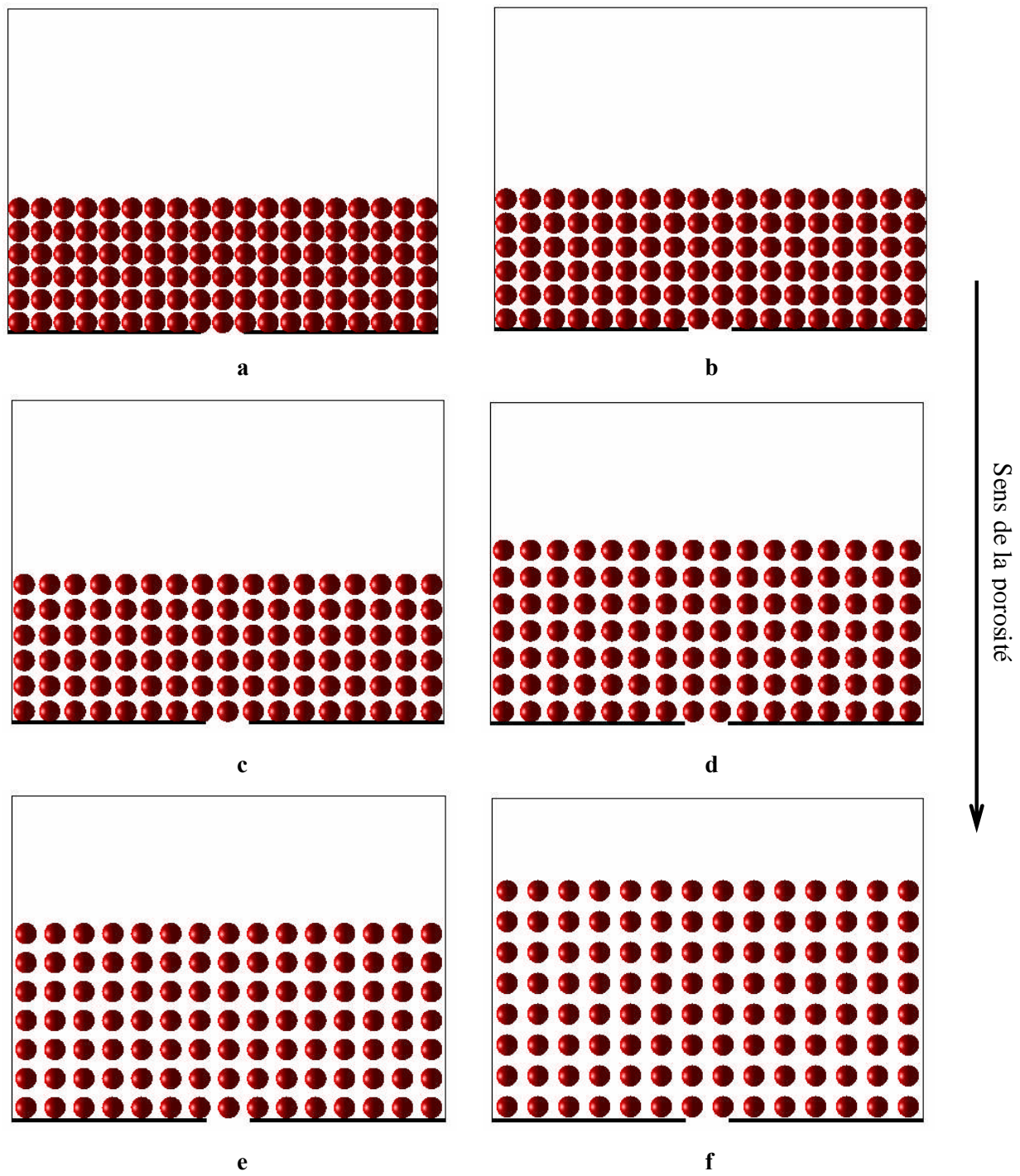


Figure 5.7 Géométrie du dépôt de particules de structure homogène : a) $\varepsilon = 0.527$, b) $\varepsilon = 0.576$, c) $\varepsilon = 0.621$, d) $\varepsilon = 0.6648$, e) $\varepsilon = 0.7054$, f) $\varepsilon = 0.7434$.

Selon la figure 5.8, nous avons comparé l'évolution de la perméabilité des dépôts homogènes de différentes valeurs de porosités à celle d'un dépôt hétérogène soumis à divers paramètres d'études tels que la force ionique et le gradient de pression motrice. Pour un dépôt hétérogène soumis à une force attractive dominante (figure 5.8,-a), l'empilement peut se ramener à un dépôt homogène de porosité $\varepsilon = 0.6648$ correspondant à un réseau cubique simple de longueur de maille élémentaire $a (=2.r+l)$, où $l = \frac{r}{2}$. Dans ce cas, ce dépôt homogène est représenté par un empilement de 16 particules par couche.

La diminution de la force ionique (figure 5.8.-b) provoque une structure du dépôt dense dont l'évolution de la perméabilité est assez importante, d'où un milieu moins poreux. Le dépôt hétérogène sera ramené donc à un dépôt plus dense que dans le cas précédent, c'est le cas d'un réseau cubique simple de longueur de la maille élémentaire $a (=2.r+l)$ avec $l = \frac{2r}{9}$ caractérisé par une densité : $\varepsilon = 0.576$ et qui correspond à un dépôt composé de 18 particules par couche.

Finalement, l'augmentation du gradient de pression motrice (figure 5.8.-c), nous amène à une nouvelle évolution de la perméabilité dont la courbe coïncide avec celle d'un dépôt homogène de porosité comprise entre $\varepsilon = 0.576$ et $\varepsilon = 0.6648$.

En synthétisant les valeurs de porosité trouvées d'un dépôt de structure homogène correspondantes à un dépôt de structure hétérogène soumis à divers paramètres d'étude, on aura :

Dépôt de structure hétérogène soumis à :	Dépôt de structure homogène : réseau cubique de longueur de maille élémentaire « a »	
	Longueur de maille élémentaire	porosité
F_{vdw}	$a=2.r+l$ $l = \frac{r}{2}$	$\varepsilon = 0.6648$
F_{dc}	$a=2.r+l$ $l = \frac{2r}{9}$	$\varepsilon = 0.576$
F_h		$0.576 < \varepsilon < 0.6648$.

Ces résultats ont une application pratique intéressante puisqu'ils peuvent permettre de prendre en compte plus simplement dans les modèles classiques l'effet des paramètres tels que le gradient de pression transmembranaire et les forces d'interactions physico-chimiques sur la résistance globale du système membrane + dépôt. Rappelons que les modèles classiques consistent à considérer plusieurs résistances hydrauliques en série de telle sorte que la résistance totale du système soit par exemple la somme de la résistance de la membrane et de la résistance du dépôt. La résistance du dépôt étant classiquement calculée à partir de la relation de Kozeny Carman dans laquelle la porosité est un paramètre.

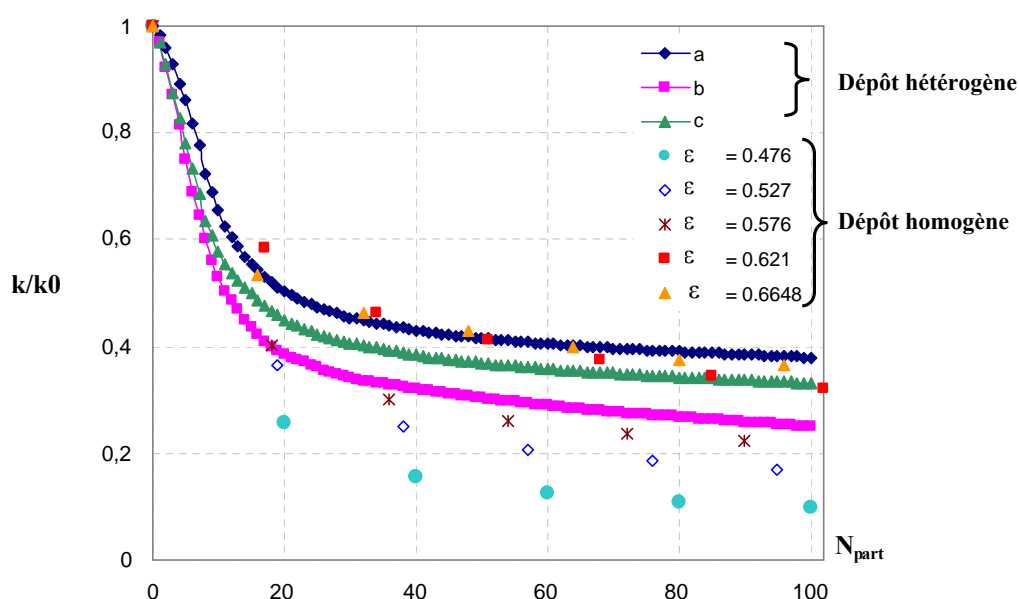


Figure 5.8 Evolution de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées. Dépôt hétérogène sous l'influence des : a) effets attractifs, b) effets répulsifs, c) effet hydrodynamiques.

5.2.2 Effet de la taille de la particule

Nous nous intéressons ici à l'effet de la taille sur la porosité moyenne du dépôt formé. Dans ce calcul, 29, 100, 237 particules de diamètres respectivement deux, trois, quatre fois inférieur au pore, sont introduites une par une dans le domaine à partir d'une position initiale amont tirées au hasard. Les résultats sont interprétés en termes de variation de la porosité moyenne du système en fonction du volume de particules déposées.

En premier lieu, nous avons étudié l'effet de la taille de particules sur la porosité moyenne en présence d'une force attractive dominante de type Van Der Waals. Selon la figure 5.9, nous

constatons que la porosité moyenne obtenue est pratiquement identique quelles que soient les tailles de particules appliquées.

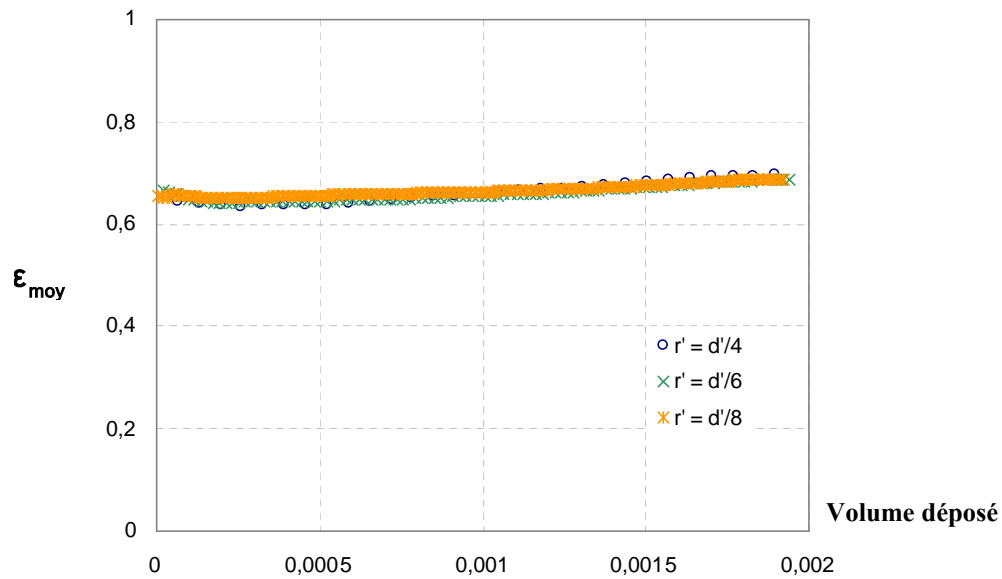


Figure 5.9 Porosité moyenne du dépôt en fonction du volume déposé : influence des effets attractifs.

Nous nous plaçons par la suite dans le cas de la formation d'un dépôt de particules soumises à une force répulsive dominante de type double couche. La figure 5.10 permet de mettre en évidence l'effet de la taille de particule sur la porosité de l'ensemble. En effet, pour un diamètre de pore donné, la porosité moyenne du système décroît lorsque le diamètre des particules diminue. Ces résultats sont en accord avec la relation de Tsay et Weinbaum (2.8).

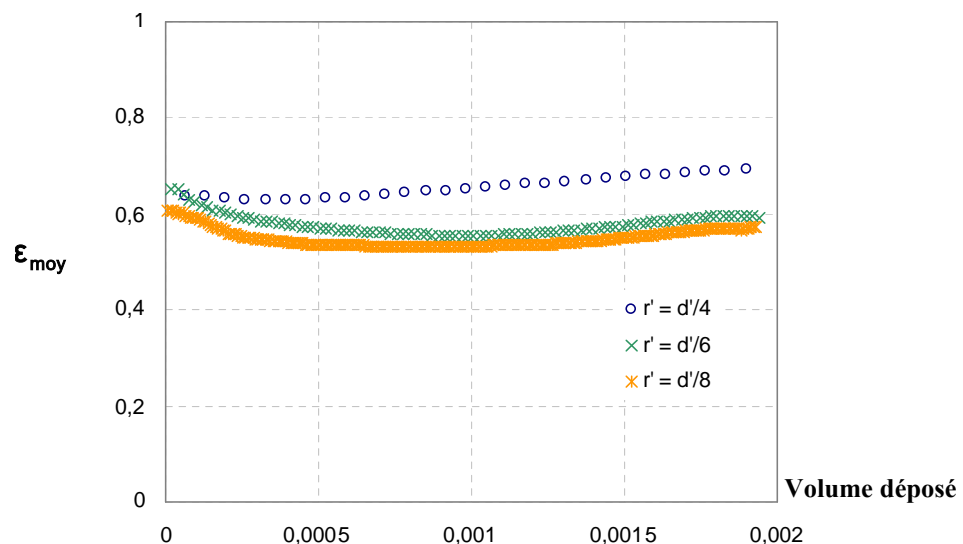


Figure 5.10 Porosité moyenne du dépôt en fonction du volume déposé : influence des effets répulsifs.

L'augmentation du gradient de pression motrice, à faible force ionique, nous amène à obtenir un dépôt assez dense mais plus étalé sur la paroi. Ceci entraîne une porosité moyenne plus importante que celle obtenue en présence d'une force répulsive élevée (figure 5.11).

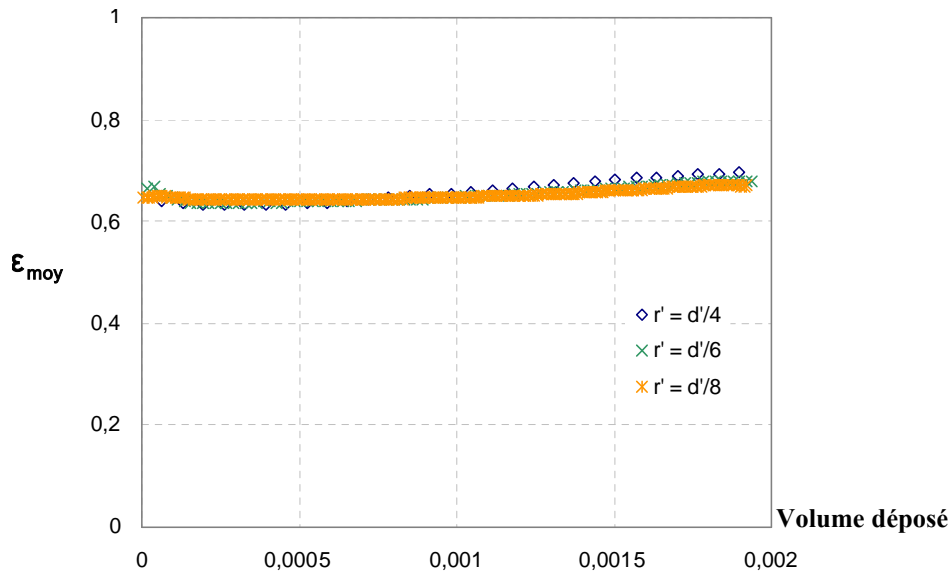


Figure 5.11 Porosité moyenne du dépôt en fonction du volume déposé : influence des effets hydrodynamiques.

5.3 Angles de capture des particules au cours d'une filtration

L'étude de l'effet de la force hydrodynamique au cours d'une filtration à pression constante, a montré le faible effet du gradient de pression motrice sur l'évolution de la perméabilité du système et par la suite sur la morphologie du dépôt obtenu. En effet, en augmentant le gradient de pression motrice, à faible force ionique, nous constatons que les courbes d'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules déposées se superposent (chapitre 4). Pour cette raison, Fu et al (1998) ont comparé l'effet des divers paramètres qui peuvent s'appliquer sur une particule en suspension à côté d'une paroi filtrante. Pour une taille de particule fixée, les forces physico-chimiques sont moins importantes que celles des forces hydrodynamiques quand la distance de séparation est large puisque les forces d'interactions dépendent de la distance entre particules.

Ainsi la superposition des courbes d'évolution de la perméabilité, dans notre problème, en présence d'un gradient de pression motrice élevé et une force ionique faible, résulte de l'effet important des forces d'interactions entre les particules provoquant la formation du dépôt sur la surface filtrante. En effet, ces forces d'interactions ont un effet important sur le modèle de

contact particule-particule et particule-filtre. Une étude de l'angle de capture est nécessaire, afin de comprendre l'effet des forces physico-chimiques sur la formation du gâteau.

5.3.1 Angles de capture au cours d'une filtration à pression imposée

On se place dans le cas de l'étude de la formation du dépôt de particule en présence d'un gradient de pression motrice élevée et une force ionique faible. On fixe le nombre total de particules à lancer en haut du domaine à $N_{\text{part}}=100$. Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale amant tirée au hasard. La taille des particules est prise deux fois plus petite que la taille du pore.

Afin de tenir compte à la fois de la forme sphérique des particules, de l'effet d'entraînement de l'écoulement et des forces de nature répulsive intervenant lors du contact avec un obstacle, nous proposons la détermination de l'angle de capture de chaque particule déposée. Celui ci définit un secteur de collage sur chacun des collecteurs potentiels du dépôt. A partir d'un modèle qui simule l'agglomération de particules à la surface d'un filtre en microfiltration tangentielle par la seule règle de contact-capture, Schmitz et *al.* (1993), ont développé un modèle simple qui utilise des angles de capture pour définir la zone d'accrochage d'une particule injectée sur une particule de l'agrégat. Le comportement d'une particule en suspension qui rencontre une particule collectrice a été modélisé comme suit (figure 5.12) :

- Adhésion

Une particule de centre A est immédiatement stoppée lorsqu'elle se pose sur le filtre. Si elle entre en collision avec une particule de centre B préalablement collectée, elle est également capturée à condition que la droite des centres (AB) soit à l'intérieur du secteur angulaire caractérisée par l'angle θ . Ce secteur est centré sur la droite passant par B et parallèle à la trajectoire qui a été suivie par la particule de centre A. Son importance, selon les cas, est définie par deux paramètres :

- angle de capture incident θ_i , quand la particule suit une trajectoire incidente (figure 5.12 a).
- angle de capture θ_v , quand la particule suit une trajectoire verticale (figure 5.12 b).

- Déplacement

Lorsque la droite des centres (AB) est à l'extérieur du secteur de collage, la particule de centre A effectue une rotation de centre B autour de la particule de centre B. Le sens de rotation est

déterminé par la position de la droite des centres par rapport à la droite passant par B et parallèle à la trajectoire suivie (incidente ou verticale) (figures 5.12 c et d)

Ces règles de comportement sont en accord avec les visualisations expérimentales effectuées par Houi (1986) dans le cas de la filtration frontale. L'amplitude des angles de capture caractérise l'importance des forces physico-chimiques vis-à-vis des forces hydrodynamiques. Les observations effectuées par Houi et al. (1989) en micromodèle, concernant la filtration sur une membrane minérale d'une boue de forage diluée, montrent à l'évidence l'instabilité des dépôts de surface qui se développent et la complexité des mécanismes mis en jeu.

La figure 5.13 représente la morphologie du dépôt obtenu par cette étude ainsi que la répartition des angles de capture. Nous constatons qu'à faible force ionique, l'augmentation du gradient de pression motrice a un faible effet sur la répartition de la particule déposée en fonction de l'angle de capture θ . En effet, en présence d'une force répulsive prédominante (figure 5.13 a), la majorité des particules sont situées dans des secteurs angulaires $(-10,10)$ et $(-90,80)$. Le premier secteur correspond au fait que la compétition entre l'ensemble des forces qui apparaissent dans l'équation (2.24) se traduit par un agencement plus compact des particules, les particules ici ne sont plus en contact. Le deuxième secteur est dû à l'effet répulsif qui repousse une particule par sa rotation autour d'une autre particule déjà déposée jusqu'à vérification du modèle de contact-capture. En augmentant l'effet hydrodynamique (figures 5.13 b et c), la répartition des particules déposées en fonction de l'angle de capture est légèrement modifiée par rapport aux résultats précédents. Bien que les dépôts obtenus dans ces cas soient de structures presque identiques, on remarque une légère modification concernant la répartition des particules en fonction de l'angle de capture pour les deux cas. Ceci est dû à l'effet répulsif entraînant la rotation de la particule injectée autour d'une autre particule déjà déposée.

Les résultats obtenus valident le modèle simple effectué par Schmitz et al. (1993). En effet, sous des conditions d'études appliquées, la particule en mouvement peut être immédiatement capturée par une particule préalablement collectée ou, effectuée une rotation autour de cette dernière provoquant par la suite une variation au niveau de l'angle de capture.

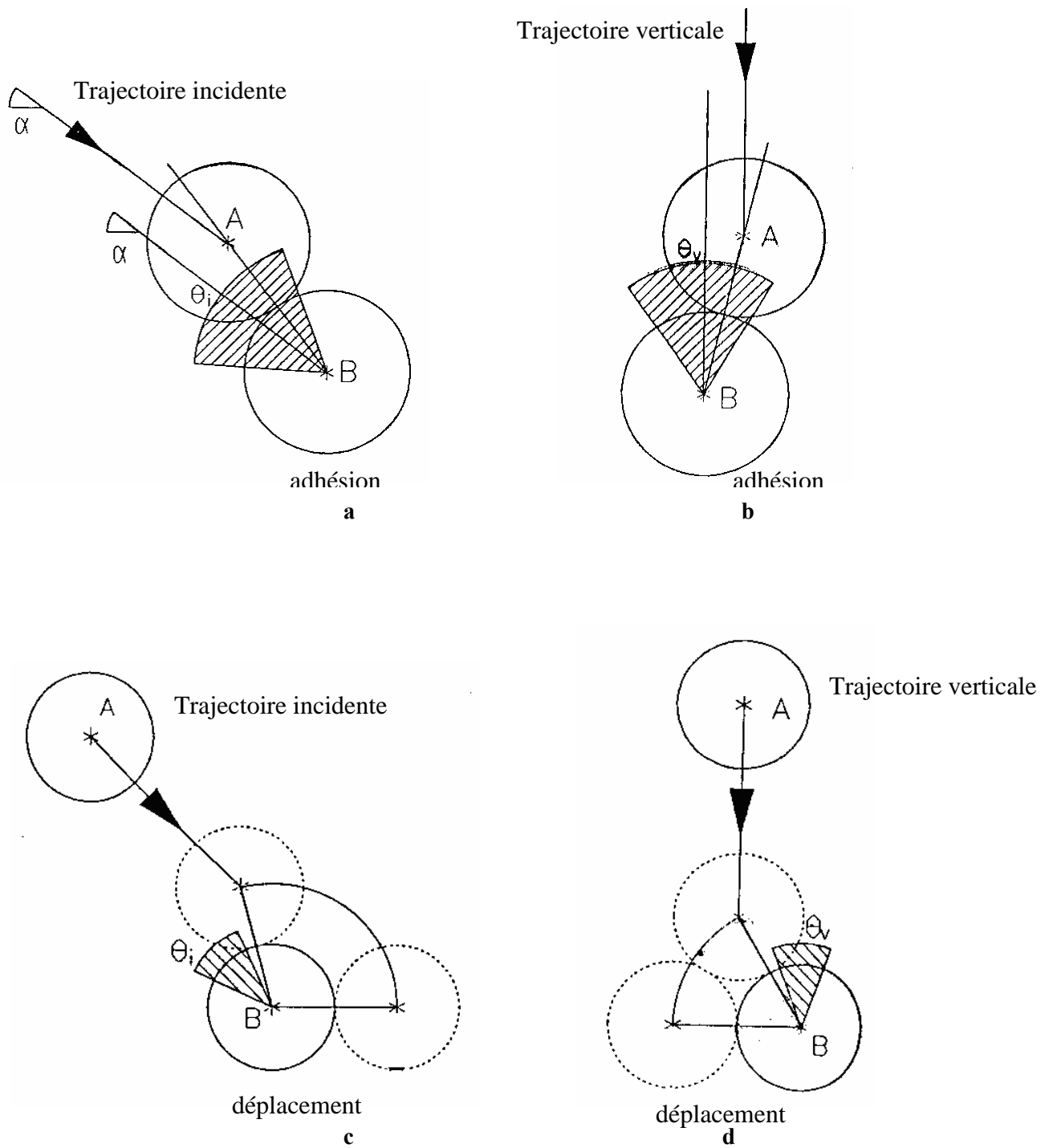


Figure 5.12 Règles d'adhésion et de déplacement du modèle simple à angles de capture.

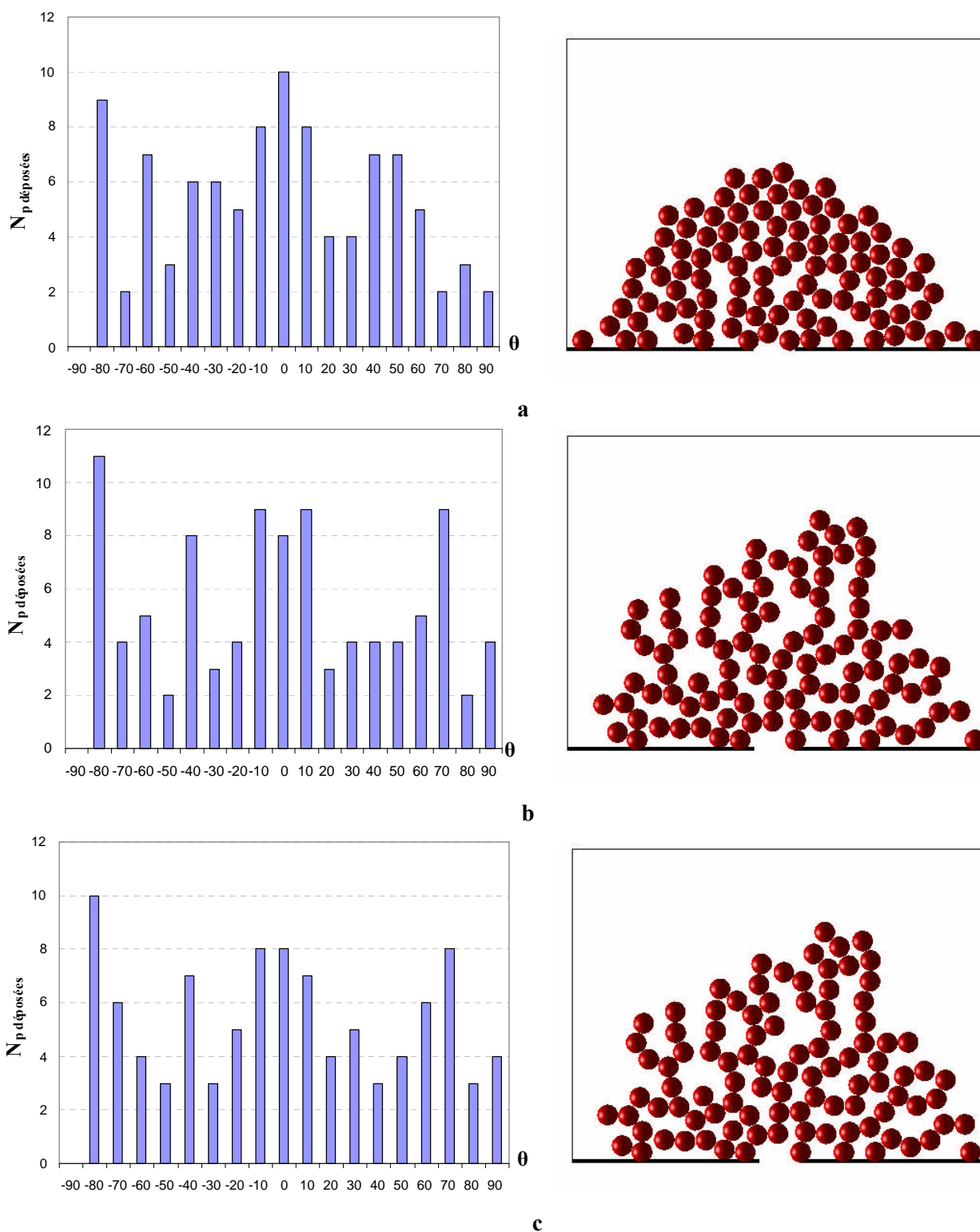


Figure 5.13 Répartition des particules déposées en fonction d'angle de capture θ : influence des effets hydrodynamiques : a) $\Delta P' = 1$, b) $\Delta P' = 100$, c) $\Delta P' = 200$

5.3.2 Angles de capture au cours d'une filtration à débit imposé

L'étude de l'effet de la force hydrodynamique sur la formation du dépôt de particules au cours d'une filtration sur une surface filtrante à pression imposée est biaisée puisque l'augmentation de la résistance hydraulique du système, lorsque les particules se déposent, provoque la diminution de la vitesse de filtration et donc de la force hydrodynamique au cours d'une expérience. Il est donc difficile de comparer l'amplitude des forces hydrodynamiques et des forces physico-chimiques dans ces conditions. Pour cette raison, nous avons pensé à faire l'étude de la formation du dépôt au cours d'une filtration à débit imposé. Dans ce cas, on fixe la vitesse d'écoulement en amont du domaine d'étude et on fixe la pression de sortie au niveau du pore. On augmente au cours du temps la différence de pression amont-aval pour garder un débit constant malgré l'augmentation de perte de charge. Ainsi la force hydrodynamique sur une particule dépend toujours du champ hydrodynamique local mais en moyenne elle conservera la même intensité au cours de la formation du dépôt

La vitesse d'écoulement adimensionnelle en amont de domaine d'étude est prise égale à $U_1 = 5.625 \cdot 10^{-8}$. Cette valeur est déterminée à partir de la valeur du débit obtenue lors de l'étude de la formation du dépôt à pression imposée en présence d'un gradient de pression motrice élevée et d'une force ionique faible.

Sur la figure 5.14, on présente l'évolution de la perte de charge en fonction du nombre de particules injectées pour différentes valeurs de la vitesse initiale d'écoulement. En augmentant la vitesse d'écoulement, les variations de la pression sont de moins en moins importantes jusqu'à atteindre une valeur limite de vitesse où les courbes se superposent. Ces résultats sont dû au fait qu'en augmentant la vitesse d'écoulement et donc du débit, c'est l'effet hydrodynamique qui domine et il finit par masquer les effets physico-chimiques.

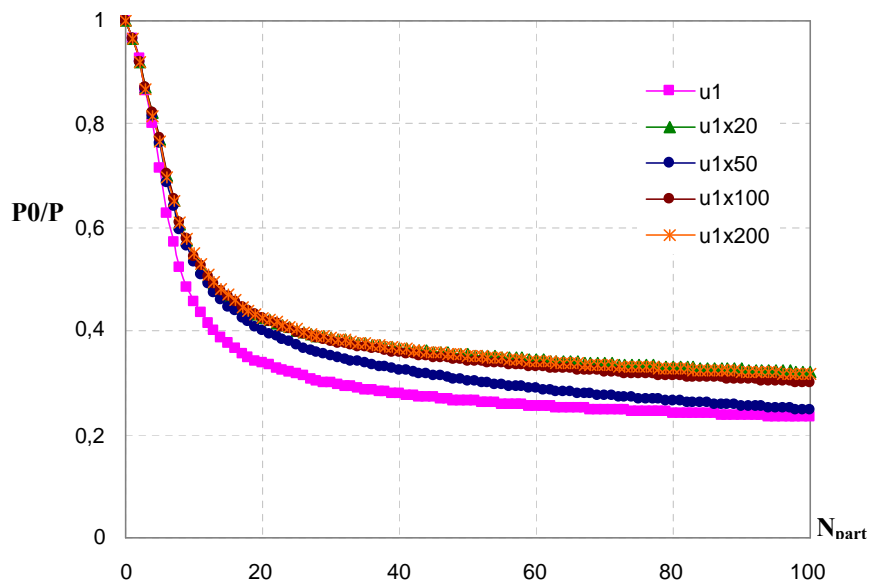


Figure 5.14 Evolution de la pression en fonction du nombre de particules injectées pour différentes valeurs de la vitesse d'écoulement

Selon la figure 5.15, nous constatons qu'en présence d'une faible vitesse d'écoulement, le dépôt obtenu est plus dense en présence d'une force répulsive dominante. En augmentant le débit, la force hydrodynamique augmente ce permet de vaincre la barrière de potentiel répulsif de Van der Waals. Ainsi le dépôt obtenu est de plus en plus dendritique et les particules sont en contacts. On remarque dans ces conditions d'étude, que la présence d'un débit important nous amène à obtenir une structure du dépôt semblable à celle obtenue dans le cas de la formation du dépôt à pression imposée.

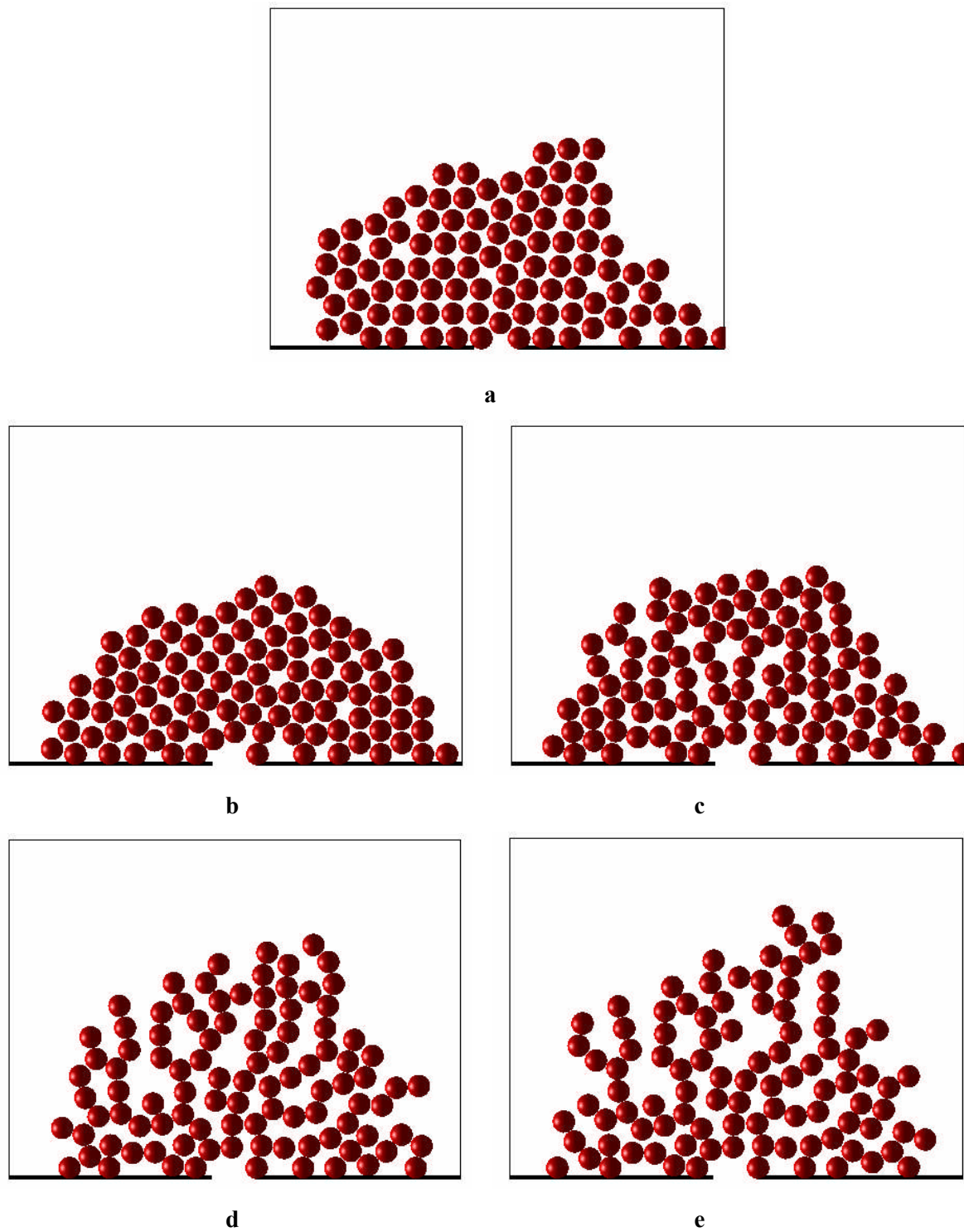


Figure 5.15 Exemples de dépôt de particules : a) U1, b) U1*20, c) U1*50, d) U1*100, e) U1*200.

Afin d'augmenter l'effet physico-chimique, on a diminué le débit initial (figure 5.16). On constate alors que cette diminution provoque la réduction de la perte de charge. Ceci est dû à l'effet important des forces physico-chimiques sur la structure du dépôt obtenu et précisément c'est à cause de la force de répulsion qui intervient à plus grande portée et qui donc repousse les particules plus loin.

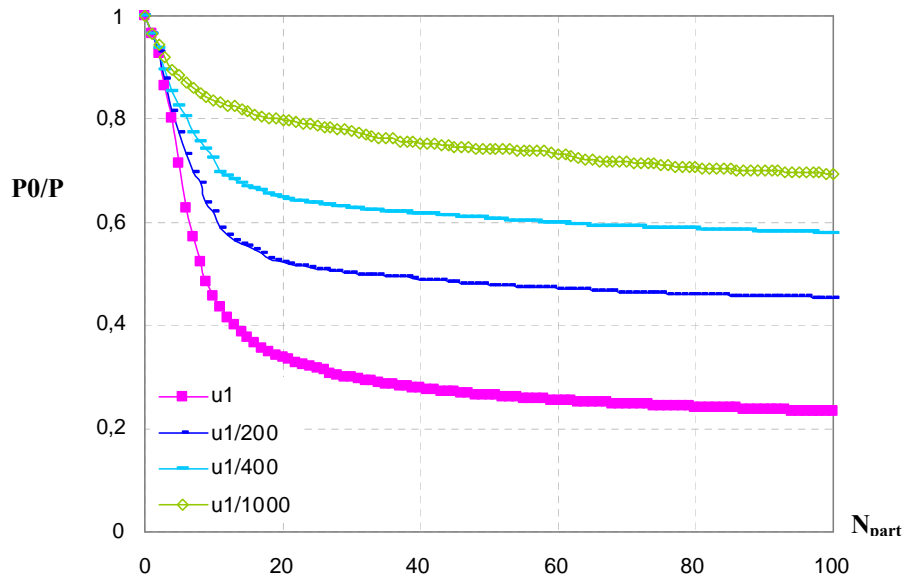


Figure 5.16 Evolution de la pression en fonction du nombre de particules injectées pour différentes valeurs de la vitesse d'écoulement

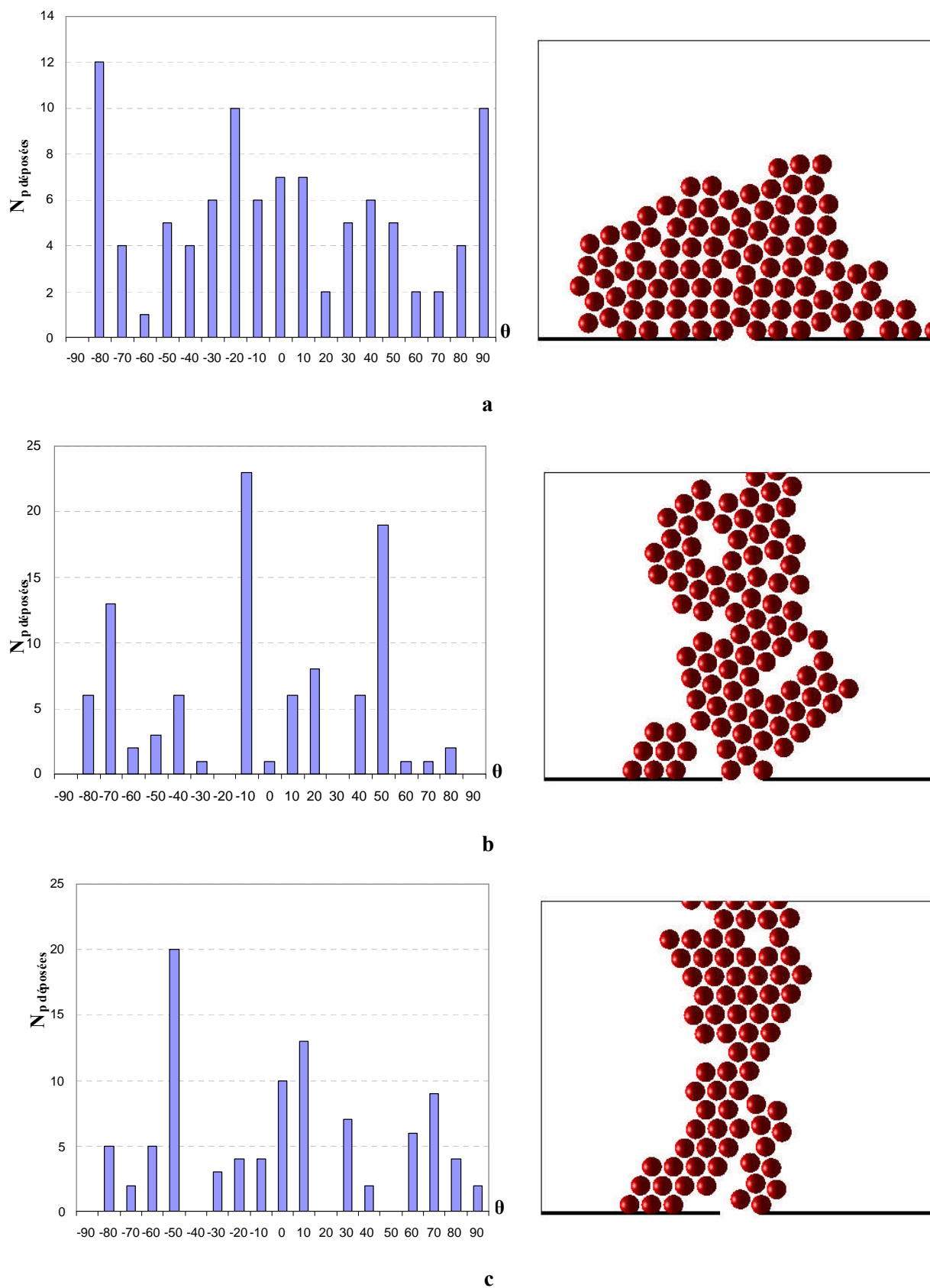


Figure 5.17 Répartition des particules déposées en fonction d'angle de capture θ pour différentes valeurs de vitesse d'écoulement initial : a) $U_1 = 5.625 \cdot 10^{-8}$, b) $U_1/200$, c) $U_1/400$.

La figure 5.17 présente la répartition des particules en fonction de l'angle de capture pour un débit imposé. La diminution du débit provoque un nouvel arrangement de particules caractérisé par des secteurs de capture différents de ceux obtenus à pression imposée. Ainsi en diminuant le débit initial, la plupart des particules sont localisées dans des secteurs angulaires résultant du déplacement d'une particule en mouvement par rapport à une autre déjà déposée (figure 5.12). Ces résultats sont dû au fait qu'en diminuant la vitesse d'écoulement et donc du débit, ce sont les effets physico-chimiques qui dominent et le dépôt est de plus en plus localisé au dessus du pore.

5.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons analysé la sensibilité à divers paramètres de notre problème d'étude. L'étude de la formation du dépôt de particules à pression imposé, montre l'effet important des forces physico-chimiques sur la porosité moyenne du dépôt. Toutefois la prise en compte de l'influence des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre est complexe. Une étude a été donc effectuée, dans le but de ramener le problème complexe de dépôt hétérogène à un dépôt homogène tout en restant dans les mêmes conditions d'étude c'est-à-dire de respecter la porosité du système à étudier.

Ensuite nous avons essayé d'expliquer le faible effet de la force hydrodynamique sur la formation du dépôt de particules au cours d'une filtration à pression imposée (chapitre 4). Pour cette raison une comparaison des effets physico-chimiques et hydrodynamiques sur une particule déposée au cours de la formation du dépôt a été effectuée. Cette étude est basée sur la répartition des particules déposées en fonction d'angle de capture dans deux cas : le premier concerne la filtration à pression imposée et, le deuxième est le cas de la filtration à débit imposé.

Bibliographie

Dong, K.J., Yang R.Y., Zou R.P., Yy A.B., Roach G., Jamieson E, *Simulation of the cake formation and growth in sedimentation and filtration, Third International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries*, 2003.

Fu, L. Fred., Dempsey, Brian A., *Modeling the effect of particle size and charge on the structure of the filter cake in ultrafiltration*, Journal of membrane Science, 149, 221-240, 1998.

Gassara, D., Schmitz, P., Ayadi, A., Prat, M., *Numerical simulation of particle accumulation at the membrane surface in cross flow microfiltration*, article soumis à publication 2007.

Houi, D., *Modélisations expérimentales et théoriques de l'accumulation de particules à la surface d'un filtre*, these d'état de l'INPT, 1986.

Houi, D., Ritter, A., Filtration of muds by a porous medium, 5th I.F.P. Research Conf. on Expl./Prod., 1989.

Schmitz P., Wandelt B., Houi D. and Hildenbrand M., *Particle aggregation at the membrane surface in crossflow microfiltration*, Journal of Membrane Science, 84, 171-183, 1993.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail avait pour but de caractériser l'influence des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre. Plus particulièrement il s'agissait de simuler la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle. La surface filtrante est constituée de pores circulaires régulièrement répartis suivant un arrangement carré. Pour simplifier, l'étude est réalisée sur un domaine constitué d'un élément unitaire représentatif de cette surface, muni de conditions aux limites périodiques. De plus, dans une première approche quasi bidimensionnelle, le domaine est restreint à une cellule Hele-Shaw dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule, de telle sorte que le modèle de Darcy s'applique sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale aléatoirement choisie et décrivent des trajectoires qui tiennent compte de la structure de l'écoulement et des interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées. L'écoulement de Darcy dans le domaine complet est recalculé une fois la particule déposée, sur un champ de perméabilité variable comprenant une région fluide de type Hele-Shaw et une région poreuse correspondant au dépôt.

Afin d'analyser la formation d'un dépôt de particules sur une surface poreuse au cours d'une microfiltration tangentielle, une étude théorique a été menée dans le chapitre 3 pour déterminer la densité de probabilité de capture de la première particule à proximité d'un pore d'une surface poreuse modèle. L'étude a été réalisée par deux manières différentes : (1) avec position initiale aléatoirement choisie de la particule et (2) à partir d'une position initiale bien déterminée. Nous avons caractérisé l'influence de la taille de particule, de la porosité et des forces physico-chimiques. Les résultats montrent l'existence d'une trajectoire critique de la particule où la densité de capture de la particule occupant cette trajectoire est maximale.

Une simulation dynamique de la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle est présentée dans le chapitre 4. Différentes microstructures de dépôt sont obtenues en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice. Les résultats sont interprétés quantitativement, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts, en terme de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées.

L'influence de la force ionique élevée sur le phénomène est marquée par l'évolution de la perméabilité selon les différentes valeurs de la constante de Hamaker. Lorsque nous avons tracé les courbes d'évolution de la perméabilité en fonction du nombre de particules injectées,

nous observons qu'une augmentation de la constante de Hamaker implique une augmentation de l'effet attractif provoquant par la suite une structure du dépôt très ouverte d'où un milieu plus poreux.

Lorsque nous changeons l'environnement ionique, les résultats montrent qu'une diminution de la force ionique implique une réduction de l'évolution de la perméabilité observable. La diminution de la force ionique agit directement sur l'épaisseur de la double couche, en l'augmentant. De ce fait, le potentiel répulsif entre particule/milieu poreux et particule/particule devient plus favorable. Cette condition a fait apparaître des dépôts de particules se traduisant par un agencement plus compact des particules. Les dépôts dans ce cas sont plus denses mais les particules ne sont pas en contact.

Finalement, l'augmentation du gradient de pression motrice, pour une force ionique faible, conduit à un nouvel arrangement des particules au sein du dépôt. La particule atteint une position d'équilibre au contact, la barrière de potentiel étant surmontée par l'augmentation de la force de traînée. Le dépôt obtenu est dense mais plus étalé sur la paroi que lorsque le gradient de pression motrice est plus faible. Dans cette situation les particules sont en contact.

Ensuite afin de prévoir l'effet de la taille des particules sur la structure du dépôt, nous avons développé une étude statistique de la formation de dépôts de particules sphériques sur une surface de filtre modèle en utilisant différents rapports entre la taille des particules et celle du pore de la paroi. Les résultats obtenus nous ont permis d'interpréter les différentes microstructures de dépôt obtenues, ainsi la distribution spatiale des particules, en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique et le gradient de pression motrice.

Notre problème d'étude est donc un problème très sensible par divers paramètres d'études provoquant des variations à l'échelle macroscopique ainsi qu'à l'échelle microscopique. De ce fait, Dans le chapitre 5 en premier lieu, une analyse de cette sensibilité a été présentée tout en étudiant l'effet des paramètres du modèle sur la variation de la porosité moyenne et en deuxième lieu, une étude de l'évolution de la perte de charge a été déterminée dans une cellule de Hele-Shaw à débit imposé. La diminution du débit, provoque un nouvel arrangement de particules où l'épaisseur du dépôt est de plus en plus élevée à celui à pression imposée. Un effet remarquable est observé sur la déposition des particules où l'angle de capture varie d'un cas à autre. Selon les résultats obtenus, l'augmentation de l'épaisseur du dépôt dans les conditions d'étude de la formation d'un gâteau à débit imposé, explique pourquoi la plus part des industries utilisent la méthode de la formation à pression imposée.

Ce travail offre d'assez nombreuses perspectives. En premier lieu, Ces simulations simplifiées devraient être étendues à des situations plus réalistes où on peut espérer simuler des

formations de dépôts sur des parois comprenant plusieurs pores, étudier l'efficacité pour une large gamme de porosité de paroi et de rapport de taille de particule/ taille de pores, étudier l'effet des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la stabilité du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre. En absence de séparation d'échelle, l'étude peut être étendue aussi à une modélisation tridimensionnelle en appliquant « la Dynamique Brinkmanienne », comme étant une approche semble être un bon compromis entre les approches simplistes de point de vue hydrodynamiques et les approches rigoureuses de type simulation numérique directe (selon la thèse de Noel F., effectuée dans l'IMFT en 2006).

D'autre part, La taille de la particule a un grand effet sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre. Il est intéressant de traiter le cas des particules nanométriques afin d'étudier l'effet du mouvement diffusif sur la formation du dépôt.

Finalement des visualisations directes sur la détermination de la densité de probabilité de capture de la première particule (expérience en cours de développement à l'IMFT) constituent également une perspective naturelle.

ANNEXE

A. Ecoulement en cellule de Hèle Shaw

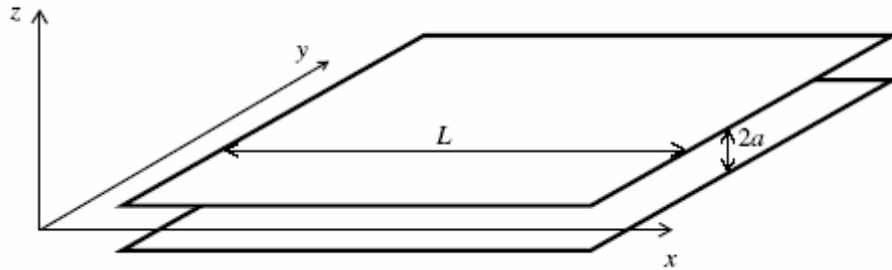


Figure A.1. Cellule de Hèle Shaw

Un écoulement en cellule de Hèle Shaw prend place entre deux plaques parallèles de dimensions L séparées d'un faible espacement

$$2a \ll L \quad (\text{A.1})$$

(Voir figure A.1)

En toute généralité, un écoulement stationnaire est décrit par un champ de vitesse tridimensionnel $\vec{v}(x, y, z)$. La connaissance du champ de vitesse est apportée par la résolution des équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0, \quad (\text{A.2})$$

$$\vec{\nabla} P + \eta \Delta \vec{v} = 0 \quad (\text{A.3})$$

La différence d'échelle entre les directions z et (x, y) autorise à écrire d'après (A.2)

$$v_z = \frac{a}{L}(v_x + v_y) \approx 0 \quad (\text{A.4})$$

Ce qui correspond à un écoulement parallèle bidimensionnel confiné par les deux plaques. La même analyse sur l'équation (A.3) permet d'écrire que l'opérateur Laplacien se limite au seul terme $\partial^2 / \partial z^2$, et cette équation devient :

$$\vec{\nabla}_{\parallel} P + \eta + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \vec{v}_{\parallel} = 0 \quad (\text{A.5})$$

Avec $\vec{\nabla}_{\parallel} = (\partial/\partial x, \partial/\partial y)$ et $\vec{v}_{\parallel} = (v_x, v_y)$. Les variations lentes de la vitesse selon les directions x et y par rapport aux variations rapide selon z permettent écrire :

$$\vec{v}_{\parallel}(x, y, z) = \vec{v}_{\parallel}(x, y, 0) \times f(z) \quad (\text{A.6})$$

Où $f(z)$ est une fonction que l'on détermine ci-dessous par intégration de l'équation (A.5), en tenant compte des conditions aux limites $\vec{v}(x, y, -a) = \vec{v}(x, y, a) = 0$. La fonction $f(z)$ trouvée est le profil parabolique de Poiseuille, et on a finalement le champ de vitesse :

$$\vec{v}_{\parallel} = -\frac{a^2}{2\eta} \left(1 - \frac{z^2}{a^2}\right) \vec{\nabla}_{\parallel} P, \quad (\text{A.7})$$

Et une vitesse moyenne :

$$\vec{v}_m = \frac{1}{2a} \int_{-a}^a \vec{v}_{\parallel} dz = -\frac{a^2}{3\eta} \vec{\nabla}_{\parallel} P \quad (\text{A.8})$$

On retrouve dans cette expression la relation linéaire entre la vitesse et le gradient de pression. Si le champ de vitesse par (A.7) n'est pas irrotationnel, le champ moyen de vitesse décrit par (A.8) peut être dérivé d'un potentiel. De plus, l'équation (A.8) est analogue à l'équation de Darcy, avec un facteur de perméabilité

$$k = \frac{a^2}{3} = \frac{(2a)^2}{12}$$

B. Résolution adimensionnelle des équations

Le calcul des trajectoires de particules s'obtient à partir de la relation fondamentale de la dynamique :

$$m_p \frac{d\vec{U}_p}{dt} = \sum \vec{F}$$

Dans l'acceptation de l'absence de l'inertie qui est considéré approprié au problème, la deuxième loi de Newton pour une particule " i " peut être écrite comme suit :

$$\vec{F}_h^i + \sum_{j=1}^{N_p} [\vec{F}_{vdw}^{ij} + \vec{F}_{dl}^{ij}] = 0$$

Si on choisit U_{HS} , vitesse de Hele- Shaw, comme échelle de vitesse et L_x comme échelle de longueur, on peut écrire toutes les grandeurs sous forme adimensionnelle :

$$U'_p = \frac{U_p}{U_{HS}}; U'_f = \frac{U_f}{U_{HS}}; x' = \frac{x}{L_x}; P' = \frac{P}{\rho U_{HS}^2},$$

$$K' = \frac{K}{L_x \cdot r}; Re = \frac{\rho r \cdot U_{HS}}{\mu}$$

Les équations adimensionnelles à résoudre seront donc :

Equation de Darcy :

$$\vec{U}_f = -K \cdot \vec{\nabla} P$$

$$\vec{U}'_f = -K' \cdot Re \cdot \vec{\nabla} P'$$

Equation du mouvement de la particule :

$$\vec{F}_{hf} + \vec{F}_{hp} + \sum_i (\vec{F}_{vdw} + \vec{F}_{dc}) = 0$$

$$6\pi\mu r (\vec{U}_p - \vec{U}_f) = \sum_i \left(-\frac{A.r}{12.h_{ji}^2} + B.k.exp(-k.h_{ji}) \right) \vec{x}_{ji}$$

\vec{x}_{ji} : est le vecteur unitaire de la droite passant par les centres des particules j et i, orienté de j vers i.

h_{ji} : est la distance entre les centres des particules j et i.

Soit :

$$F_i = F_{vdw}^i + F_{dl}^i = -\frac{A.r}{12.h_{ji}^2} + B.k.exp(-k.h_{ji})$$

On aura donc :

$$6\pi\mu r (U_p - U_f) = \sum_i F_i$$

$$U_p = U_f + \sum_i \frac{F_i}{6\pi\mu r}$$

Etant donné :

$$U'_p = \frac{U_p}{U_{HS}}; U'_f = \frac{U_f}{U_{HS}}; r' = \frac{r}{L_x}; F' = \frac{F}{\rho U_{HS}^2 L_x^2}; Re = \frac{\rho r U_{HS}}{\mu}$$

L'équation du mouvement de la particule sera donc :

$$U'_p = U'_f + Re \cdot \frac{1}{r'} \cdot \sum_i \frac{F'_i}{6\pi\mu r'}$$

On a :

$$F'_i = -\frac{A.r}{12.h_{ji}^2} + B.k.exp(-k.h_{ji})$$

En appliquant les grandeurs adimensionnels on aura finalement :

$$\frac{1}{r'} \cdot \vec{F}'_i = \left[-\frac{A'.r'}{12.h_{ji}'^2} + B'.\kappa' exp(-\kappa' h_{ji}') \right] \vec{x}_{ji}$$

Avec

$$A' = \frac{A}{\rho U_{HS}^2 L_x^2 r}, \quad B' = \frac{B}{\rho U_{HS}^2 L_x \cdot r^2} \quad \text{et} \quad \kappa' = \kappa \cdot L_x$$

C. Résolution des équations de Darcy par la méthode des volumes finis

Le maillage choisi est régulier dans les 2 directions x et y. Les points du maillage sont définis par :

$$M_{i,j}(x_i, y_j)$$

$$x_i = (i-1)\Delta x$$

$$y_j = (j-1)\Delta y$$

avec $\Delta x = \frac{L_x}{(n_x-1)}$, $\Delta y = \frac{L_y}{(n_y-1)}$

Les paramètres n_x et n_y correspondent au nombre de maille dans les directions x et y.

Le maillage défini ci-dessus est décalé en vitesse et en pression afin d'éviter des oscillations numériques du champ de pression en fonction des coordonnées de l'espace (**figure C.1**)

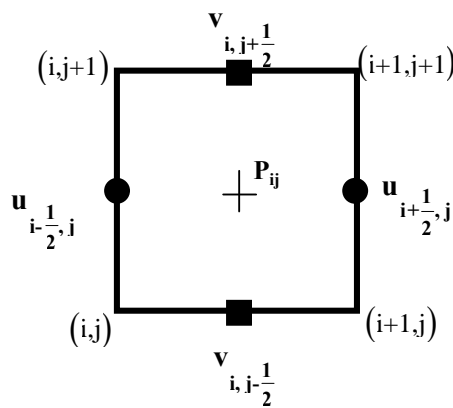


Figure C.1. Domaine de résolution

C.1 Discrétisation du problème de Darcy

Les champs de pression P et de vitesse d'écoulement \vec{v} sont solutions de l'équation de Darcy défini comme suit :

$$\vec{v} = -\frac{K}{\mu} \vec{\nabla} P \quad (C.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (C.2)$$

En combinant (C.1) et (C.2) on obtient :

$$\vec{\nabla} \cdot (K \vec{\nabla} P) = 0 \quad (C.3)$$

On intègre cette équation sur le volume de contrôle V défini par les points $M_{i,j}$, $M_{i+1,j}$, $M_{i+1,j+1}$ et $M_{i,j+1}$:

$$\iiint_V \vec{\nabla} \cdot (K \vec{\nabla} P) dV = \iint_S K \vec{\nabla} P \cdot \vec{n} ds \quad (C.4)$$

\vec{n} est la normale à la surface S délimitant le volume V .

La perméabilité est constante dans un élément du maillage. On peut écrire que :

$$\int_S K \left(\frac{\partial P}{\partial x} \right) n_x dS = \Delta y \left(K_{i,j} \left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_i - \alpha} - K_{i,j} \left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_{i-1} + \alpha} \right)$$

$$\int_S K \left(\frac{\partial P}{\partial y} \right) n_y dS = \Delta x \left(K_{i,j} \left(\frac{\partial P}{\partial y} \right)_{y_j - \alpha} - K_{i,j} \left(\frac{\partial P}{\partial y} \right)_{y_{j-1} + \alpha} \right)$$

avec $\alpha \rightarrow 0$

On peut écrire que :

$$\left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_i - \alpha} = 2 \frac{P_{i+1/2,j} - P_{i,j}}{\Delta x} + 0(\Delta x)$$

$$\left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_{i-1} + \alpha} = 2 \frac{P_{i,j} - P_{i-1/2,j}}{\Delta x} + 0(\Delta x)$$

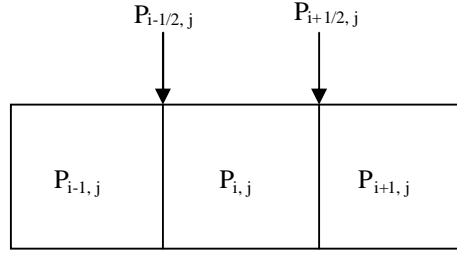


Figure C.2. Pression aux interfaces des cellules du maillage

$$\left(\frac{\partial P}{\partial y} \right)_{y_{j-\alpha}} = 2 \frac{P_{i,j+1/2} - P_{i,j}}{\Delta y} + 0(\Delta y)$$

$$\left(\frac{\partial P}{\partial y} \right)_{y_{j+1+\alpha}} = 2 \frac{P_{i,j+1} - P_{i,j+1/2}}{\Delta y} + 0(\Delta y)$$

Les pressions $P_{i+1/2,j}$ et $P_{i-1/2,j}$ vérifient la continuité des flux aux interfaces des cellules du maillage. Ainsi on peut écrire que :

$$K_{i,j} \left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_i-\alpha} = K_{i+1,j} \left(\frac{\partial P}{\partial x} \right)_{x_{i+1}+\alpha} \quad (C.5)$$

On en déduit que :

$$P_{i+1/2,j} = \frac{K_{i+1,j} P_{i+1,j} + K_{i,j} P_{i,j}}{K_{i+1,j} + K_{i,j}} \quad (C.6)$$

En exprimant les pressions sur les autres interfaces, on obtient ainsi un schéma au second ordre pour le calcul des flux aux interfaces.

Les composantes de la vitesse de Darcy sont calculées avec :

$$u = -\frac{K}{\mu} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (C.7)$$

$$v = -\frac{K}{\mu} \frac{\partial P}{\partial y} \quad (C.8)$$

Pour calculer la première composante de la vitesse de Darcy, on intègre l'équation (C.7) sur le volume de contrôle V_u associé à cette dernière (**figure C.3**).

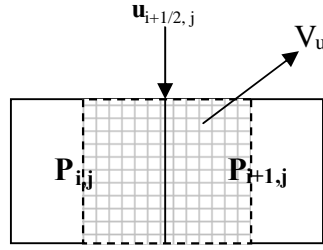


Figure C.3. Domaine de résolution.

On obtient ainsi, sachant que u est constante sur V_u :

$$u_{i+1/2,j} = \frac{1}{\Delta x} \left(\frac{K_{i,j}}{\mu} (P_{i+1/2,j} - P_{i,j}) + \frac{K_{i+1,j}}{\mu} (P_{i+1,j} - P_{i+1/2,j}) \right) \quad (C.9)$$

En procédant de manière identique pour l'autre composante, on obtient :

$$v_{i,j+1/2} = \frac{1}{\Delta y} \left(\frac{K_{i,j}}{\mu} (P_{i,j+1/2} - P_{i,j}) + \frac{K_{i,j+1}}{\mu} (P_{i,j+1} - P_{i,j+1/2}) \right) \quad (C.10)$$

Les discrétisations des termes de gradients de pression respectivement dans les directions x et y sont :

$$\frac{P_{i+1,j} - P_{i,j}}{\Delta x}$$

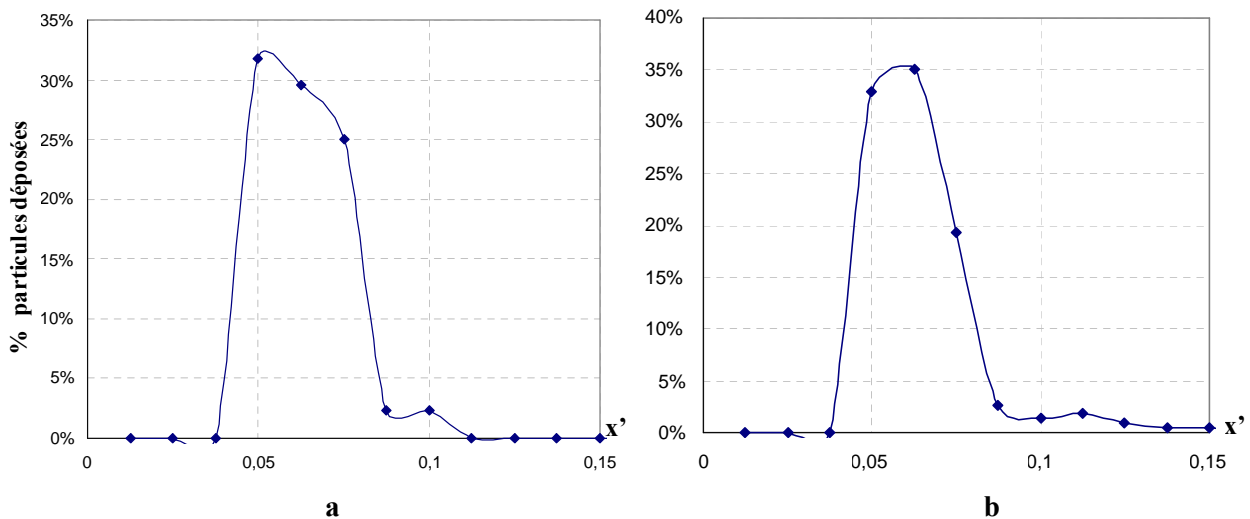
$$\frac{P_{i,j+1} - P_{i,j}}{\Delta y}$$

On obtient ainsi pour le problème de Darcy des systèmes linéaires creux, dont la matrice n'est pas symétrique si les champs de porosité et de perméabilité ne sont pas homogènes. La méthode de résolution choisie pour résoudre ces systèmes linéaires est la méthode itératives BI-CGSTAB précédé d'un pré conditionnement par la diagonale.

D. Densité de probabilité de capture de la 1^{ère} particule déposée

Nous présentons le pourcentage du nombre de particules déposées en fonction de la grandeur x' sans interactions moléculaires avec la paroi pour une taille de particule quatre fois plus petite à celle du pore. L'étude a été effectuée pour différents nombres de tirages aléatoires : 100, 500, 1000 et 5000 tirages.

L'étude effectuée montre d'une part, que la détermination de la densité de probabilité de capture pour 5000 tirages aléatoires nous amène à obtenir un résultat plus précis et d'autre part que, l'exécution pour ce cas de calcul ne dépend pas beaucoup de temps. Pour cette raison, nous avons pris dans nos calculs le cas de 5000 tirages aléatoires.



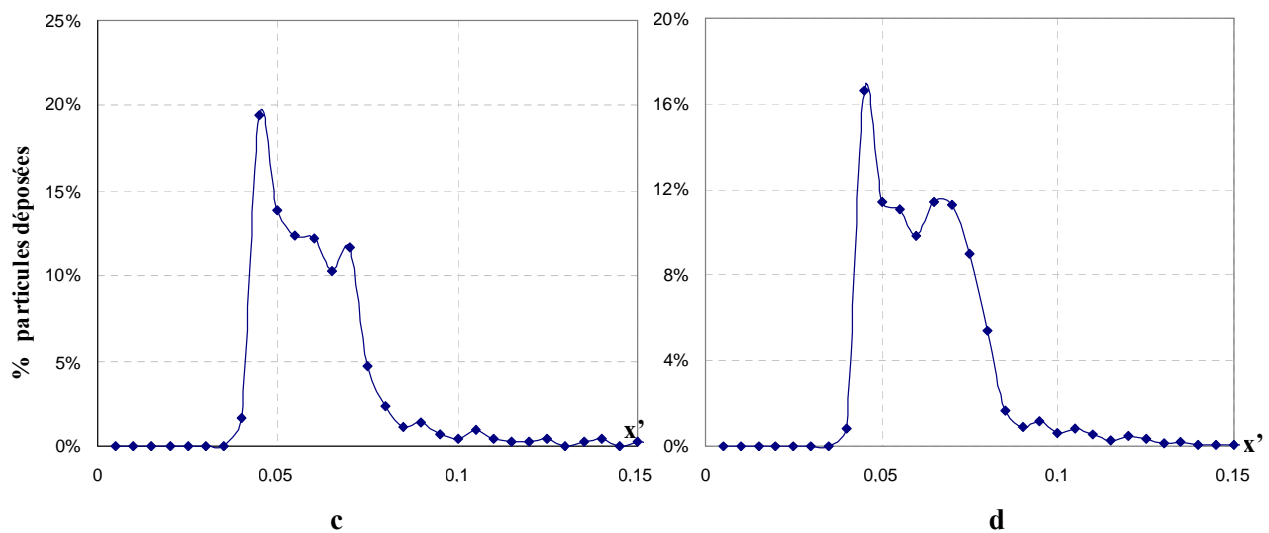


Figure D.1. Variation du pourcentage de particules déposées en fonction de x' (distance par rapport au centre du pore) : a- 100 tirages, b- 500 tirages, c- 1000 tirages, d- 5000 tirages

Simulation de la formation d'un dépôt de particules en microfiltration. Effets des conditions hydrodynamiques et des interactions physicochimiques sur la morphologie et la perméabilité apparente du dépôt.

Dorra Hammami Gassara

Résumé :

La formation d'un dépôt de particules à la surface du filtre constitue un des phénomènes limitants de toutes les opérations de microfiltration. Au fur et à mesure de sa croissance, ce dépôt, qui ajoute une résistance supplémentaire à l'écoulement du fluide, réduit progressivement le rendement énergétique du système filtrant. Généralement la résistance hydraulique du dépôt est prise égale à sa résistance hydraulique intrinsèque, c'est à dire sans tenir compte de la présence de la paroi filtrante et le dépôt est supposé homogène. Cette approximation est valable pour une couche de particules de grande épaisseur mais ne l'est plus pour une couche mince. Ce travail a pour but de caractériser l'influence des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques sur la morphologie et les propriétés de transport du dépôt résultant de l'accumulation de particules sur un filtre. Notre étude est réalisée sur un domaine constitué d'un ou plusieurs éléments unitaires représentatifs d'une surface filtrante modèle, muni de conditions aux limites périodiques. De plus, dans une première approche quasi bidimensionnelle, le domaine est restreint à une cellule Hele-Shaw dont l'épaisseur est égale au diamètre d'une particule, de telle sorte que le modèle de Darcy s'applique sur la totalité du domaine (fluide et poreux). Les particules sont injectées une par une à partir d'une position initiale aléatoirement choisie et décrivent des trajectoires qui tiennent compte de la structure de l'écoulement et des interactions physico-chimiques de type DLVO avec la surface poreuse et avec les particules déjà déposées. L'écoulement de Darcy dans le domaine complet est recalculé une fois la particule déposée, sur un champ de perméabilité variable comprenant une région fluide de type Hele-Shaw et une région poreuse correspondant au dépôt.

Une simulation dynamique de la formation d'un dépôt de particules sphériques de même dimension sur une surface de filtre modèle est présentée. Différentes microstructures de dépôt sont obtenues en faisant varier les paramètres du modèle tels que la force ionique, le gradient de pression motrice et la taille de particules. Les résultats sont interprétés quantitativement, à partir d'une étude statistique menée sur un grand nombre de dépôts, en terme de variations de la perméabilité du système « surface poreuse et dépôt » en fonction du nombre de particules déposées.

Notre problème d'étude est un problème très sensible par divers paramètres d'études provoquant des variations à l'échelle macroscopique ainsi qu'à l'échelle microscopique. De ce fait, en premier lieu, une analyse de cette sensibilité a été présentée tout en étudiant l'effet des paramètres du modèle sur la variation de la porosité moyenne et en deuxième lieu, une étude de l'évolution de la perte de charge a été déterminée dans une cellule de Hele-Shaw à débit imposé. La diminution du débit, provoque un nouvel arrangement de particules où l'épaisseur du dépôt est de plus en plus élevée à celui à pression imposée

Mots clés -microfiltration.-colmatage- Darcy- particule- taille de particule- déposition.